

1745
Atty. Dkt.: 10517/88

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

Applicants : Hiromichi NAKATA, et al.
Serial No. : 09/802,959
Filed : March 12, 2001
For : FUEL CELL GAS SEPARATOR, MANUFACTURING METHOD
THEREOF, AND FUEL CELL

Group Art Unit : 1745

Examiner : Not Yet Assigned

Assistant Commissioner of Patents
Washington, D.C. 20231

RECEIVED
JUL -3 2001
TC 1700 MAIL ROOM

CLAIM TO CONVENTION PRIORITY UNDER 35 U.S.C. § 119

SIR:

The Convention Priority Date of Japanese Patent Application Nos. 2001-058173 filed on March 2, 2001 was claimed in the Declaration/ Power of Attorney filed under separate cover. To complete the claim to the Convention Priority Date of said Japanese Patent Application, a certified copy thereof is submitted herewith.

Respectfully submitted,

Mark H. Neblett
Registration No. 42,028

Dated: July 2, 2001

KENYON & KENYON
1500 K Street, N.W., Suite 700
Washington, DC 20005
Tel: (202) 220-4200
Fax: (202) 220-4201
DC373071v1



日本国特許庁
PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日
Date of Application: 2001年 3月 2日

出願番号
Application Number: 特願2001-058173

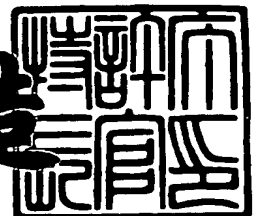
出願人
Applicant (s): トヨタ自動車株式会社

RECEIVED
JUL -3 2001
TC 1700 MAIL ROOM

2001年 4月 6日

特許庁長官
Commissioner,
Patent Office

及川耕造



出証番号 出証特2001-3027836

【書類名】 特許願

【整理番号】 PA14E124

【提出日】 平成13年 3月 2日

【あて先】 特許庁長官 及川 耕造 殿

【国際特許分類】 H01M 8/02

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

【氏名】 中田 博道

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

【氏名】 横井 正良

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

【氏名】 大西 昌澄

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

【氏名】 相原 秀雄

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

【氏名】 村手 政志

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

【氏名】 加治 敬史

【特許出願人】

【識別番号】 000003207

【氏名又は名称】 トヨタ自動車株式会社

【代理人】

【識別番号】 100096817

【弁理士】

【氏名又は名称】 五十嵐 孝雄

【電話番号】 052-218-5061

【選任した代理人】

【識別番号】 100097146

【弁理士】

【氏名又は名称】 下出 隆史

【選任した代理人】

【識別番号】 100102750

【弁理士】

【氏名又は名称】 市川 浩

【選任した代理人】

【識別番号】 100109759

【弁理士】

【氏名又は名称】 加藤 光宏

【先の出願に基づく優先権主張】

【出願番号】 特願2000- 68553

【出願日】 平成12年 3月13日

【先の出願に基づく優先権主張】

【出願番号】 特願2000-169897

【出願日】 平成12年 6月 7日

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 007847

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9708410

【包括委任状番号】 9904031

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 燃料電池用ガスセパレータおよび該燃料電池用セパレータの製造方法並びに燃料電池

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 燃料電池内に組み込まれたときにその表面でガス流路を形成する燃料電池用ガスセパレータであって、

金属製のセパレータ基材と、

前記ガスセパレータを燃料電池内に組み込んだときに、隣接する部材と接触する接触面に対応する前記セパレータ基材表面のうち、前記隣接する部材との間の接触抵抗に関わる表面上に少なくとも形成され、貴金属によって構成される貴金属コート層と、

炭素材料によって前記貴金属コート層上に形成されるカーボンコート層とを備える燃料電池用ガスセパレータ。

【請求項 2】 前記貴金属コート層の厚さは、 $0.01\mu\text{m}$ から $10\mu\text{m}$ の範囲にあることを特徴とする

請求項 1 記載の燃料電池用ガスセパレータ。

【請求項 3】 前記貴金属コート層を構成する前記貴金属は、銀であることを特徴とする

請求項 1 または 2 記載の燃料電池用ガスセパレータ。

【請求項 4】 前記貴金属コート層を構成する前記貴金属は、金であることを特徴とする

請求項 1 または 2 記載の燃料電池用ガスセパレータ。

【請求項 5】 請求項 1 ないし 4 いずれか記載の燃料電池用ガスセパレータであって、

前記セパレータ基材は卑金属によって構成され、

前記カーボンコート層は、前記セパレータ基材上において、前記貴金属コート層が形成される領域に加えて、前記燃料電池用内で前記ガス流路を形成する領域上にも形成され、

前記セパレータ基材を構成する前記卑金属は、前記カーボンコート層が形成さ

れた条件下で、不動態を形成し得ることを特徴とする

燃料電池用ガスセパレータ。

【請求項 6】 前記貴金属コート層は、前記セパレータ基材上において、前記接触抵抗に関わる表面上に加えて、前記ガス流路を形成する領域上にさらに形成されることを特徴とする

請求項 1 ないし 5 いずれか記載の燃料電池用ガスセパレータ。

【請求項 7】 請求項 1 ないし 6 いずれか記載の燃料電池用ガスセパレータであって、

少なくとも、前記セパレータ基材における前記接触抵抗に関わる表面上において、前記貴金属コート層と前記セパレータ基材との間に、卑金属によって構成される下地コート層をさらに備えることを特徴とする

燃料電池用ガスセパレータ。

【請求項 8】 前記下地コート層を構成する卑金属は、前記セパレータ基材を構成する金属よりも貴であることを特徴とする

請求項 7 記載の燃料電池用ガスセパレータ。

【請求項 9】 請求項 7 または 8 記載の燃料電池用ガスセパレータであって

前記カーボンコート層および前記下地コート層は、前記セパレータ基材上において、前記接触抵抗に関わる表面上に加えて、前記燃料電池内で前記ガス流路を形成する領域上にさらに形成され、

前記下地コート層は、前記カーボンコート層が形成された条件下で不動態を形成し得る卑金属によって形成されることを特徴とする

燃料電池用ガスセパレータ。

【請求項 10】 前記下地コート層の厚さは、 $0.01\mu\text{m}$ から $10\mu\text{m}$ の範囲にあることを特徴とする

請求項 7 ないし 9 いずれか記載の燃料電池用ガスセパレータ

【請求項 11】 前記カーボンコート層は、前記炭素材料の他に、耐酸性を有する樹脂あるいはゴムをバインダとして含むことを特徴とする

請求項 1 ないし 10 いずれか記載の燃料電池用ガスセパレータ。

【請求項 1 2】 燃料電池内に組み込まれたときにその表面でガス流路を形成する燃料電池用ガスセパレータであって

金属製のセパレータ基材と、

前記ガスセパレータを燃料電池内に組み込んだときに、隣接する部材と接触する接触面に対応する前記セパレータ基材表面のうち、前記隣接する部材との間の接触抵抗に関わる表面上に少なくとも形成され、卑金属によって構成される卑金属コート層と、

炭素材料によって前記卑金属コート層上に形成されるカーボンコート層とを備え、

前記卑金属コート層は、該卑金属コート層上に前記カーボンコート層が形成された条件下で十分に安定であって電子伝導性を有する複数の粒子を、少なくとも前記カーボンコート層と接する側の表面上に備えることを特徴とする

燃料電池用ガスセパレータ。

【請求項 1 3】 前記電子伝導性を有する粒子は、炭素を備える粒子であることを特徴とする

請求項 1 2 記載の燃料電池用ガスセパレータ。

【請求項 1 4】 卑金属コート層を形成する前記卑金属は、前記卑金属コート層上に前記カーボンコート層が形成された条件下において、その表面が酸化されて不動態層を形成し得る金属である

請求項 1 2 または 1 3 記載の燃料電池用ガスセパレータ。

【請求項 1 5】 燃料電池内に組み込まれたときにその表面でガス流路を形成する燃料電池用ガスセパレータの製造方法であって、

(a) 所定の形状を有する金属製のセパレータ基材を成形する工程と、

(b) 前記 (a) 工程で得た前記セパレータ基材において、前記ガスセパレータを燃料電池内に組み込んだときに隣接する部材と接触する接触面に対応する前記セパレータ基材表面のうち、少なくとも、前記隣接する部材との間の接触抵抗に関わる表面上に、貴金属からなる貴金属コート層を形成する工程と、

(c) 前記 (b) 工程で形成した前記貴金属コート層上に、炭素材料によってカーボンコート層を形成する工程と

を備えることを特徴とする燃料電池用ガスセパレータの製造方法。

【請求項 1 6】 請求項 1 5 記載の燃料電池用ガスセパレータの製造方法であって、

前記（b）工程は、

（b-1）前記貴金属コート層を形成するのに先立って、前記セパレータ基材上の、少なくとも前記接触抵抗に関わる表面上に、卑金属によって構成される下地コート層を形成する工程と、

（b-2）前記下地コート層上に、前記貴金属コート層を形成する工程とを備える燃料電池用ガスセパレータの製造方法。

【請求項 1 7】 前記貴金属コート層を構成する前記貴金属は、銀であることを特徴とする

請求項 1 5 または 1 6 記載の燃料電池用ガスセパレータの製造方法。

【請求項 1 8】 前記貴金属コート層を構成する前記貴金属は、金であることを特徴とする

請求項 1 5 または 1 6 記載の燃料電池用ガスセパレータの製造方法。

【請求項 1 9】 燃料電池内に組み込まれたときにその表面でガス流路を形成する燃料電池用ガスセパレータの製造方法であって、

（a）所定の形状を有する金属製のセパレータ基材を成形する工程と、

（b）前記（a）工程で得た前記セパレータ基材表面において、前記ガスセパレータを燃料電池内に組み込んだときに隣接する部材と接触する接触面に対応する前記セパレータ基材表面のうち、少なくとも、前記隣接する部材との間の接触抵抗に関わる表面上に、卑金属からなる卑金属コート層を形成する工程と、

（c）前記（b）工程で形成した前記卑金属コート層上に、炭素材料によってカーボンコート層を形成する工程と

を備え、

前記（b）工程で形成する前記卑金属コート層は、該卑金属コート層上に前記カーボンコート層が形成された条件下で十分に安定であって電子伝導性を有する複数の粒子を、少なくとも前記カーボンコート層と接する側の表面上に備えることを特徴とする燃料電池用ガスセパレータの製造方法。

【請求項 2 0】 前記電子伝導性を有する粒子は、炭素を備える粒子であることを特徴とする

請求項 1 9 記載の燃料電池用ガスセパレータの製造方法。

【請求項 2 1】 卑金属コート層を形成する前記卑金属は、前記卑金属コート層上に前記カーボンコート層が形成された条件下において、その表面が酸化されて不動態層を形成し得る金属である

請求項 1 9 または 2 0 記載の燃料電池用ガスセパレータの製造方法。

【請求項 2 2】 燃料電池内に組み込まれたときにその表面でガス流路を形成する燃料電池用ガスセパレータの製造方法であって、

(a) 前記燃料電池用ガスセパレータの基材となる金属部材において、その表面上の少なくとも一部の領域に、貴金属からなる貴金属コート層を形成する工程と、

(b) 前記 (a) 工程で形成した前記貴金属コート層上に、炭素材料からなるカーボンコート層を形成する工程と、

(c) その表面上に前記貴金属コート層およびカーボンコート層を形成した前記金属部材を、所定の形状に成形する工程と

を備えることを特徴とする燃料電池用ガスセパレータの製造方法。

【請求項 2 3】 請求項 2 2 記載の燃料電池用ガスセパレータの製造方法であって、

前記 (a) 工程は、

(a-1) 前記貴金属コート層を形成するのに先立って、前記金属部材上の、少なくとも前記貴金属コート層を形成する領域に、卑金属によって構成される下地コート層を形成する工程と、

(a-2) 前記下地コート層上に、前記貴金属コート層を形成する工程とを備える燃料電池用ガスセパレータの製造方法。

【請求項 2 4】 前記貴金属コート層を構成する前記貴金属は、銀であることを特徴とする

請求項 2 2 または 2 3 記載の燃料電池用ガスセパレータの製造方法。

【請求項 2 5】 前記貴金属コート層を構成する前記貴金属は、金であるこ

とを特徴とする

請求項 2 2 または 2 3 記載の燃料電池用ガスセパレータの製造方法。

【請求項 2 6】 燃料電池内に組み込まれたときにその表面でガス流路を形成する燃料電池用ガスセパレータの製造方法であって、

(a) 前記燃料電池用ガスセパレータの基材となる金属部材において、その表面上の少なくとも一部の領域に、卑金属からなる卑金属コート層を形成する工程と、

(b) 前記 (a) 工程で形成した前記卑金属コート層上に、炭素材料からなるカーボンコート層を形成する工程と、

(c) その表面上に前記卑金属コート層およびカーボンコート層を形成した前記金属部材を、所定の形状に成形する工程とを備え、

前記 (a) 工程で形成する前記卑金属コート層は、該卑金属コート層上に前記カーボンコート層が形成された条件下で十分に安定であって電子伝導性を有する複数の粒子を、少なくとも前記カーボンコート層と接する側の表面上に備えることを特徴とする燃料電池用ガスセパレータの製造方法。

【請求項 2 7】 前記電子伝導性を有する粒子は、炭素を備える粒子であることを特徴とする

請求項 2 6 記載の燃料電池用ガスセパレータの製造方法。

【請求項 2 8】 卑金属コート層を形成する前記卑金属は、前記卑金属コート層上に前記カーボンコート層が形成された条件下において、その表面が酸化されて不動態層を形成し得る金属である

請求項 2 6 または 2 7 記載の燃料電池用ガスセパレータの製造方法。

【請求項 2 9】 請求項 2 2 ないし 2 8 いずれか記載の燃料電池用ガスセパレータの製造方法であって、

前記金属部材は、前記燃料電池用ガスセパレータを複数製造可能な板状部材であり、

前記 (c) 工程で行なう成形の工程は、

(c-1) 前記金属部材に所定の凹凸形状を形成する工程と、

(c-2) 前記(c-1) 工程後、前記金属部材を複数に分割する工程とを含むことを特徴とする

燃料電池用ガスセパレータの製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、燃料電池用ガスセパレータおよび該燃料電池用セパレータの製造方法並びに燃料電池に関し、詳しくは、単セルを複数積層して構成する燃料電池において、隣接する単セル間に設けられ、隣接する部材との間で燃料ガス流路あるいは酸化ガス流路を形成すると共に、燃料ガスと酸化ガスとを隔てる燃料電池用ガスセパレータおよび該燃料電池用セパレータの製造方法並びに燃料電池に関する。

【0002】

【従来の技術】

燃料電池用ガスセパレータは、複数の単セルが積層された燃料電池スタックを構成する部材であって、十分なガス不透過性を備えることによって、隣り合う単セルのそれぞれに供給される燃料ガスおよび酸化ガスが混じり合うのを防いでいる。従来、このような燃料電池用ガスセパレータは、炭素材料あるいは金属材料を用いて製造されてきた。一般に、金属材料は強度に優れているため、炭素材料を用いる場合に比べてより薄いガスセパレータを製造することが可能であり、ガスセパレータを薄くすることによって、燃料電池全体を小型化することが可能となる。また、金属製のガスセパレータは、金属板をプレスするという簡便な方法によって製造することができるため、製造工程を簡素化・短期化して生産性を向上させ、製造コストの上昇を抑えることができる。

【0003】

金属製のガスセパレータを製造する際に用いる金属としては、十分な導電性と強度、および成形性を有する金属の中から適宜選択することができるが、ステンレスやアルミニウムなど、金属材料として特に広く大量に流通している金属を用いることによって、製造コストの大幅な削減が可能となる。このような金属材料

を用いる場合には、通常は、燃料電池が動作する環境下での耐食性を十分に確保するための構成が要求される。ガスセパレータの耐食性を向上させるための構成としては、ガスセパレータの表面を、銀によって被覆する構成が提案されている（例えば、特開昭60-115173号公報等）。表面を銀で被覆することにより、金属製ガスセパレータの耐食性を大きく向上させることができる。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、動作している燃料電池内部の環境は、非常に強い酸性状態となり、銀によって金属製ガスセパレータの被覆を行っても、耐食性が不十分となるおそれがあった。燃料電池の内部環境を酸性化する要因としては、主として2つ考えられる。燃料電池（例えば固体高分子型燃料電池）では、電解質膜の表面に、白金や白金合金などを備える触媒層が設けられており、通常この触媒層には、上記触媒層を形成するための材料として用いた白金の硫酸塩などが残留している。従って、燃料電池の動作を開始すると、残留していた白金塩が、燃料電池内のガス流路に生じた生成水中に溶出して、燃料電池の内部環境を酸性化する。また、固体高分子型燃料電池が備える固体高分子電解質膜は、プロトン伝導性を実現する官能基としてスルホン酸基を備えているが、この固体高分子電解質膜は、燃料電池が発電を行うのに伴ってスルホン酸基の部分でごく微量ずつ徐々に分解して硫酸を生じ、燃料電池の内部環境を酸性化する。

【0005】

上記のように白金塩の溶出やスルホン酸基の分解が起こると、燃料電池の内部環境はpH2程度になるといわれており、このような強い酸性条件下では、長時間燃料電池の運転を行う間には、イオン化傾向の小さな銀を用いてガスセパレータの被覆を行う場合であっても、耐食性が不十分となるおそれがあった。ガスセパレータの表面が腐食すると、ガスセパレータを構成する金属のイオンが溶出する。このように、ガスセパレータから金属イオン（銀、あるいは銀で被覆したガスセパレータの基板部を構成する金属のイオン）が溶出して、ごく微量であってもこの金属イオンが固体高分子電解質膜中に混入すると、電解質膜が備えるイオン交換基（スルホン酸基）に上記金属イオンが引き寄せられて、固体高分子電解

質膜のプロトン伝導性を損なうことになり、燃料電池の性能を維持していく上で望ましくない。したがって、より耐食性に優れた燃料電池用ガスセパレータが望まれていた。

【 0 0 0 6 】

本発明の燃料電池用ガスセパレータおよび該燃料電池用セパレータの製造方法並びに燃料電池は、こうした問題を解決し、金属製ガスセパレータにおいて、十分な耐食性を実現することを目的としてなされ、次の構成を採った。

【 0 0 0 7 】

【課題を解決するための手段およびその作用・効果】

本発明の第 1 の燃料電池用ガスセパレータは、燃料電池内に組み込まれたときにその表面でガス流路を形成する燃料電池用ガスセパレータであって、

金属製のセパレータ基材と、

前記ガスセパレータを燃料電池内に組み込んだときに、隣接する部材と接触する接触面に対応する前記セパレータ基材表面のうち、前記隣接する部材との間の接触抵抗に関わる表面上に少なくとも形成され、貴金属によって構成される貴金属コート層と、

炭素材料によって前記貴金属コート層上に形成されるカーボンコート層とを備えることを要旨とする。

【 0 0 0 8 】

また、本発明の第 1 の燃料電池用ガスセパレータの製造方法は、燃料電池内に組み込まれたときにその表面でガス流路を形成する燃料電池用ガスセパレータの製造方法であって、

(a) 所定の形状を有する金属製のセパレータ基材を成形する工程と、

(b) 前記 (a) 工程で得た前記セパレータ基材表面において、前記ガスセパレータを燃料電池内に組み込んだときに隣接する部材と接触する接触面に対応する前記セパレータ基材表面のうち、少なくとも、前記隣接する部材との間の接触抵抗に関わる表面上に、貴金属からなる貴金属コート層を形成する工程と、

(c) 前記 (b) 工程で形成した前記貴金属コート層上に、炭素材料によってカーボンコート層を形成する工程と

を備えることを要旨とする。

【 0 0 0 9 】

また、本発明の第 2 の燃料電池用ガスセパレータの製造方法は、燃料電池内に組み込まれたときにその表面でガス流路を形成する燃料電池用ガスセパレータの製造方法であって、

(a) 前記燃料電池用ガスセパレータの基材となる金属部材において、その表面上の少なくとも一部の領域に、貴金属からなる貴金属コート層を形成する工程と、

(b) 前記 (a) 工程で形成した前記貴金属コート層上に、炭素材料からなるカーボンコート層を形成する工程と、

(c) その表面上に前記貴金属コート層およびカーボンコート層を形成した前記金属部材を、所定の形状に成形する工程と

を備えることを要旨とする。

【 0 0 1 0 】

以上のように構成された本発明の第 1 の燃料電池用ガスセパレータと、本発明の第 1 および第 2 の燃料電池用ガスセパレータの製造方法により製造されるガスセパレータは、前記ガスセパレータを燃料電池内に組み込んだときに、隣接する部材と接触する接触面に対応する前記セパレータ基材表面のうち、前記隣接する部材との間の接触抵抗に関わる表面上に少なくとも形成され、貴金属によって構成される貴金属コート層を備える。したがって、このようなセパレータを構成する金属において、上記貴金属コート層に覆われる領域、すなわち、燃料電池用ガスセパレータの導電性に関わる領域が酸化されて不動態を形成してしまうことなく、不動態形成に起因する抵抗の増加を防ぐことができる。

【 0 0 1 1 】

また、上記貴金属コート層を形成する貴金属は、イオン化傾向が小さく耐食性に優れた金属であるため、燃料電池用ガスセパレータにおいて、このような貴金属コート層を形成した領域の耐食性を十分に確保することができる。特に、貴金属からなる貴金属コート層上に、炭素材料によって構成されるカーボンコート層をさらに形成しているため、貴金属コート層を設けた領域において、極めて高い

耐食性を実現することができる。また、貴金属コート層上にカーボンコート層を設けることで、貴金属コート層がさらされる環境がより穏やか（pHが中性より）となるため、十分な耐食性を実現するために必要な貴金属コート層の厚さをより薄くすることが可能となり、単に貴金属によって耐食性を確保する場合に比べて、燃料電池用ガスセパレータを製造するためのコストを削減することができる。

【 0 0 1 2 】

なお、炭素材料によって構成されるカーボンコート層は、十分な導電性を実現可能な量の炭素材料を備えていればよく、カーボンコート層として成形するための結着剤（バインダ）などをさらに備えることとしてもよい。

【 0 0 1 3 】

また、上記本発明の第1の燃料電池用ガスセパレータと、本発明の第1および第2の燃料電池用ガスセパレータの製造方法において、貴金属コート層上にカーボンコート層を形成する構成は、貴金属コート層の直上にカーボンコート層を形成する構成だけでなく、貴金属コート層の保護や、貴金属コート層とカーボンコート層との密着性を高める等の目的のために、貴金属コート層とカーボンコート層との間に介在するコート層をさらに設ける構成としても良く、本発明はそのようなものも対象としている。

【 0 0 1 4 】

このような本発明の第1の燃料電池用ガスセパレータにおいて、前記貴金属コート層の厚さは、 $0.01\mu\text{m}$ から $10\mu\text{m}$ の範囲にあることとしてもよい。メッキ層は、通常は一様でなめらかな層ではなく、微細な孔が生じている。この微細な孔は、メッキ厚を厚くするほどその形成を抑えることができるが、通常金属メッキにおいては、その厚さが $10\mu\text{m}$ 程度を越えると、上記微細な孔の形成を抑える効果は飽和状態となる。したがって、このような厚さの貴金属コート層を設けることによって、燃料電池用ガスセパレータを構成し貴金属コート層によって覆われる金属が、上記微細な孔を介して腐食するのを防止し、燃料電池用ガスセパレータの耐食性を効果的に確保することができる。特に、本発明の第1の燃料電池用ガスセパレータは、炭素材料によって構成されるカーボンコート層を備

えることにより、貴金属コート層に要求される耐食性が低減され、貴金属からなる貴金属コート層を $1\ \mu\text{m}$ 以下という薄さにしても、十分な耐食性を得ることが可能となる。

【 0 0 1 5 】

本発明の第 1 の燃料電池用ガスセパレータと、本発明の第 1 および第 2 の燃料電池用ガスセパレータの製造方法において、前記貴金属コート層を構成する前記貴金属は、銀であることとしてもよい。銀は、貴金属の中では卑な金属であるが、カーボンコート層をさらにその上に設けることによって銀自身は十分な耐食性を実現することができると共に、銀は貴金属の中では安価な金属であるため、耐食性および導電性に優れた燃料電池用ガスセパレータを製造するのに要するコストを削減することができる。

【 0 0 1 6 】

本発明の第 1 の燃料電池用ガスセパレータと、本発明の第 1 および第 2 の燃料電池用ガスセパレータの製造方法において、前記貴金属コート層を構成する前記貴金属は、金であることとしてもよい。このようなガスセパレータを用いるならば、燃料電池をより高い温度で動作させる場合のように、燃料電池の内部環境をより厳しくする場合にも、ガスセパレータの耐食性に関する信頼性を十分に確保することができる。

【 0 0 1 7 】

本発明の第 1 の燃料電池用ガスセパレータにおいて、

前記セパレータ基材は卑金属によって構成され、

前記カーボンコート層は、前記セパレータ基材上において、前記貴金属コート層が形成される領域に加えて、前記燃料電池用内で前記ガス流路を形成する領域上にも形成され、

前記セパレータ基材を構成する前記卑金属は、前記カーボンコート層が形成された条件下で、不動態を形成し得ることとしてもよい。

【 0 0 1 8 】

このような構成とすれば、カーボンコート層が形成された条件下で不動態を形成し得る卑金属によってセパレータ基材が形成されるため、前記貴金属コート層

を設けた領域以外も、カーボンコート層で覆うことによって十分な耐食性を備えることができる。酸化物被膜である不動態を形成する卑金属は、この不動態層を形成することによって卑金属自身は腐食から保護されるため、優れた耐食性を有している。また、このように不動態を形成する卑金属は、炭素材料によって構成されるカーボンコート層を形成することによって耐食性はさらに向上する。したがって、貴金属コート層を設けた領域以外においてもカーボンコート層を設けることで、燃料電池用ガスセパレータ全体の耐食性を十分に確保することができる。なお、その表面に不動態を形成して優れた耐食性を示し、セパレータ基材を構成するにふさわしい成形性を有すると共に十分な強度を有する卑金属材料としては、例えばステンレスを挙げることができる。

【 0 0 1 9 】

また、本発明の第 1 の燃料電池用ガスセパレータにおいて、前記貴金属コート層は、前記セパレータ基材上において、前記接触抵抗に関わる表面上に加えて、前記ガス流路を形成する領域上にさらに形成されることとしてもよい。このような構成とすれば、前記ガス流路を形成する領域においても、貴金属によって形成される貴金属コート層およびこの上に形成されるカーボンコート層によって、耐食性を確保することができる。

【 0 0 2 0 】

このような本発明の第 1 の燃料電池用ガスセパレータは、少なくとも、前記セパレータ基材における前記接触抵抗に関わる表面上において、前記貴金属コート層と前記セパレータ基材との間に、卑金属によって構成される下地コート層をさらに備えることとしてもよい。

【 0 0 2 1 】

同様に、本発明の第 1 の燃料電池用ガスセパレータの製造方法において、
前記 (b) 工程は、

(b-1) 前記貴金属コート層を形成するのに先立って、前記セパレータ基材上の、少なくとも前記接触抵抗に関わる表面上に、卑金属によって構成される下地コート層を形成する工程と、

(b-2) 前記下地コート層上に、前記貴金属コート層を形成する工程と

を備えることとしてもよい。

【 0 0 2 2 】

また、本発明の第 2 の燃料電池用ガスセパレータの製造方法において、

前記 (a) 工程は、

(a - 1) 前記貴金属コート層を形成するのに先立って、前記金属部材上の、少なくとも前記貴金属コート層を形成する領域に、卑金属によって構成される下地コート層を形成する工程と、

(a - 2) 前記下地コート層上に、前記貴金属コート層を形成する工程とを備えることとしてもよい。

【 0 0 2 3 】

以上のように構成された本発明の第 1 の燃料電池用ガスセパレータと、本発明の第 1 および第 2 の燃料電池用ガスセパレータの製造方法によれば、前記貴金属コート層と前記セパレータ基材との間に、卑金属によって構成される下地コート層をさらに設けることによって、セパレータ基材において、貴金属コート層を形成した領域で腐食が進行するのをより抑えることができると共に、貴金属からなる貴金属コート層をより薄くすることが可能となる。

【 0 0 2 4 】

このような本発明の第 1 の燃料電池用ガスセパレータにおいて、前記下地コート層を構成する卑金属は、前記セパレータ基材を構成する金属よりも貴である、すなわち、イオン化傾向が小さいこととしてもよい。このような構成とすれば、イオン化傾向の大きい卑金属によってセパレータ基材を形成する場合にも、貴金属からなる貴金属コート層をより容易に形成することができる。すなわち、イオン化傾向の大きい卑金属は、貴金属メッキを施すためのメッキ浴中で侵されるおそれがあるため貴金属メッキが困難であるが、より貴な卑金属からなる下地コート層をセパレータ基材上に一旦形成することによって、貴金属メッキを容易に行なうことが可能となる。さらに、異種の金属が共存するときには卑である金属はより腐食しやすくなるおそれがあるが、より貴な卑金属からなる下地コート層を設けることによって、このような効果を抑え、セパレータ全体の耐食性を確保することができる。

【 0 0 2 5 】

このような本発明の第 1 の燃料電池用ガスセパレータにおいて、

前記カーボンコート層および前記下地コート層は、前記セパレータ基材上において、前記接触抵抗に関わる表面上に加えて、前記燃料電池内で前記ガス流路を形成する領域上にさらに形成され、

前記下地コート層は、前記カーボンコート層が形成された条件下で不動態を形成し得る卑金属によって形成されることとしてもよい。

【 0 0 2 6 】

このような構成とすれば、前記カーボンコート層が形成された条件下で不動態を形成し得る卑金属によって下地コート層が形成されるため、前記貴金属コート層を設けた領域以外も、その上にカーボンコート層を形成した下地コート層を設けることで、十分な耐食性を備えることができる。酸化物被膜である不動態を形成する卑金属は、この不動態層を形成することで卑金属自身は腐食から保護されるため、優れた耐食性を有している。また、カーボンコート層がさらに設けられることによって耐食性はさらに向上する。したがって、燃料電池内で前記ガス流路を形成する領域において貴金属コート層を設けない場合にも、この領域に、カーボンコート層をその上にさらに形成した下地コート層を設けることで、燃料電池用ガスセパレータ全体の耐食性を十分に確保することができる。

【 0 0 2 7 】

このような本発明の第 1 の燃料電池用ガスセパレータにおいて、前記下地コート層の厚さは、 $0.01\mu\text{m}$ から $10\mu\text{m}$ の範囲にあることとしてもよい。メッキ層は、通常は一樣でなめらかな層ではなく、微細な孔が生じている。この微細な孔は、メッキ厚を厚くするほどその形成を抑えることができるが、通常金属メッキにおいては、その厚さが $10\mu\text{m}$ 程度を越えると、上記微細な孔の形成を抑える効果は飽和状態となる。したがって、このような厚さの下地コート層を設けることによって、燃料電池用ガスセパレータを構成し下地コート層によって覆われる金属が、上記微細な孔を介して腐食するのを防止し、燃料電池用ガスセパレータの耐食性を効果的に確保することができる。

【 0 0 2 8 】

また、本発明の第 1 の燃料電池用ガスセパレータの製造方法において、前記カーボンコート層は、前記炭素材料の他に、耐酸性を有する樹脂あるいはゴムをバインダとして含むこととしてもよい。このような構成とすれば、燃料電池用ガスセパレータ上にカーボンコート層を設けることによってこのガスセパレータの耐食性を向上させる効果をさらに高めることができる。すなわち、上記したようなバインダは、耐食性に優れていると共に、炭素材料によって構成されるカーボンコート層を介して水が浸透するのを防止することができるため、カーボンコート層を浸透した水に起因して燃料電池用ガスセパレータを構成する金属が腐食してしまうのを抑えることができる。

【 0 0 2 9 】

本発明の第 2 の燃料電池用ガスセパレータは、燃料電池内に組み込まれたときにその表面でガス流路を形成する燃料電池用ガスセパレータであって

金属製のセパレータ基材と、

前記ガスセパレータを燃料電池内に組み込んだときに、隣接する部材と接触する接触面に対応する前記セパレータ基材表面のうち、前記隣接する部材との間の接触抵抗に関わる表面上に少なくとも形成され、卑金属によって構成される卑金属コート層と、

炭素材料によって前記卑金属コート層上に形成されるカーボンコート層とを備え、

前記卑金属コート層は、該卑金属コート層上に前記カーボンコート層が形成された条件下で十分に安定であって電子伝導性を有する複数の粒子を、少なくとも前記カーボンコート層と接する側の表面上に備えることを要旨とする。

【 0 0 3 0 】

また、本発明の第 3 の燃料電池用ガスセパレータの製造方法は、燃料電池内に組み込まれたときにその表面でガス流路を形成する燃料電池用ガスセパレータの製造方法であって、

(a) 所定の形状を有する金属製のセパレータ基材を成形する工程と、

(b) 前記 (a) 工程で得た前記セパレータ基材において、前記ガスセパレータを燃料電池内に組み込んだときに隣接する部材と接触する接触面に対応する前

記セパレータ基材表面のうち、少なくとも、前記隣接する部材との間の接触抵抗に関わる表面上に、卑金属からなる卑金属コート層を形成する工程と

(c) 前記 (b) 工程で形成した前記卑金属コート層上に、炭素材料によってカーボンコート層を形成する工程と

を備え、

前記 (b) 工程で形成する前記卑金属コート層は、該卑金属コート層上に前記カーボンコート層が形成された条件下で十分に安定であって電子伝導性を有する複数の粒子を、少なくとも前記カーボンコート層と接する側の表面上に備えることを要旨とする。

【 0 0 3 1 】

また、本発明の第 4 の燃料電池用ガスセパレータの製造方法は、燃料電池内に組み込まれたときにその表面でガス流路を形成する燃料電池用ガスセパレータの製造方法であって、

(a) 前記燃料電池用ガスセパレータの基材となる金属部材において、その表面上の少なくとも一部の領域に、卑金属からなる卑金属コート層を形成する工程と、

(b) 前記 (a) 工程で形成した前記卑金属コート層上に、炭素材料からなるカーボンコート層を形成する工程と、

(c) その表面上に前記卑金属コート層およびカーボンコート層を形成した前記金属部材を、所定の形状に成形する工程と

を備え、

前記 (a) 工程で形成する前記卑金属コート層は、該卑金属コート層上に前記カーボンコート層が形成された条件下で十分に安定であって電子伝導性を有する複数の粒子を、少なくとも前記カーボンコート層と接する側の表面上に備えることを要旨とする。

【 0 0 3 2 】

以上のように構成された本発明の第 2 の燃料電池用ガスセパレータと、本発明の第 3 および第 4 の燃料電池用ガスセパレータの製造方法により製造されるガスセパレータは、前記ガスセパレータを燃料電池内に組み込んだときに、隣接する

部材と接触する接触面に対応する前記セパレータ基材表面のうち、前記隣接する部材との間の接触抵抗に関わる表面上に少なくとも形成され、卑金属によって構成される卑金属コート層を備える。また、この卑金属コート層は、該卑金属コート層上に前記カーボンコート層が形成された条件下で十分に安定であって電子伝導性を有する複数の粒子を、少なくとも前記カーボンコート層と接する側の表面上に備える。したがって、卑金属コート層において、この卑金属コート層を形成する金属が酸化されて不動態を形成するなどの理由で導電性が低下することがあっても、セパレータの導電性は上記電子伝導性を有する粒子によって確保されるため、セパレータにおける抵抗の増加を防ぐことができる。

【 0 0 3 3 】

このような本発明の第2の燃料電池用ガスセパレータと、本発明の第3および第4の燃料電池用ガスセパレータの製造方法において、前記電子伝導性を有する粒子は、炭素を備える粒子であることとしてもよい。

【 0 0 3 4 】

また、本発明の第2の燃料電池用ガスセパレータと、本発明の第3および第4の燃料電池用ガスセパレータの製造方法において、卑金属コート層を形成する前記卑金属は、前記卑金属コート層上に前記カーボンコート層が形成された条件下において、その表面が酸化されて不動態層を形成し得る金属であることとしてもよい。

【 0 0 3 5 】

このような構成とすれば、不動態を形成する卑金属によって卑金属コート層が形成されるため、前記卑金属コート層を設けた領域は十分な耐食性を備えることができる。酸化物被膜である不動態を形成する卑金属は、この不動態層を形成することで卑金属自身は腐食から保護されるため、優れた耐食性を有している。また、このような卑金属コート層上にカーボンコート層をさらに形成することによって、耐食性はさらに向上する。したがって、このような卑金属コート層を設けた領域においては、既述した導電性に加えて、十分な耐食性を実現することができる。

【 0 0 3 6 】

なお、本発明の第 2 および第 4 の燃料電池用ガスセパレータの製造方法によれば、金属部材を所定の形状に成形するのに先立って、金属部材の表面に、金属のコート層および炭素材料から成るコート層を形成するため、金属のコート層や炭素材料から成るコート層を形成する操作は、成形前の金属部材に対して行なえば良く、これらの各層を形成するための操作をより容易に行なうことができる。

【 0 0 3 7 】

また、本発明の第 2 および第 4 の燃料電池用ガスセパレータの製造方法において、

前記金属部材は、前記燃料電池用ガスセパレータを複数製造可能な板状部材であり、

前記（c）工程で行なう成形の工程は、

（c-1）前記金属部材に所定の凹凸形状を形成する工程と、

（c-2）前記（c-1）工程後、前記金属部材を複数に分割する工程とを含むこととしてもよい。

【 0 0 3 8 】

このような構成とすれば、金属のコート層および炭素材料から成るコート層を形成するための操作は、板状部材に対して行なえば良いため、これらの各層を形成するための操作をより容易に行なうことができる。さらに、上記各層を形成するための操作を上記金属部材に対して連続的に行なうことが容易となり、前記ガスセパレータを複数製造可能な金属部材を用いることで、複数の燃料電池用ガスセパレータを製造する際の生産性を大きく向上させることができる。

【 0 0 3 9 】

【発明の実施の形態】

以上説明した本発明の構成・作用を一層明らかにするために、以下本発明の実施の形態を、実施例に基づいて以下の順序で説明する。

1. 燃料電池の全体構成
2. 第 1 実施例のセパレータ 30 の構成と製造工程および作用・効果
3. 金属の腐食性に関する説明
4. 種々の材料をセパレータ 30 に適用した際の実験による評価

5. セパレータ 3 0 に適用可能な金属種
6. 第 2 実施例のセパレータ 1 3 0 の構成および作用・効果
7. セパレータの他の製造方法

【 0 0 4 0 】

(1) 燃料電池の全体構成 :

図 1 は、本発明の好適な一実施例であるセパレータ 3 0 の様子を表わす説明図である。図 1 (A) は、セパレータ 3 0 の断面の形状を表わす図であり、図 1 (B) は、図 1 (A) において点線で囲んだ領域 (B) についてその構成をより詳しく表わす模式図である。本発明の第 1 実施例のセパレータ 3 0 は、ステンレスによって構成された基板部 6 0 と、この基板部 6 0 を被覆する層であって銅によって構成された下地コート層 6 2 と、この下地コート層 6 2 をさらに被覆する層であって銀によって構成された貴金属コート層 6 4 と、貴金属コート層 6 4 をさらに被覆する層であって炭素材料を含有する部材からなるカーボンコート層 6 6 とからなる。また、セパレータ 3 0 は、後述するように、その表面でガスの流路を形成可能となるような所定の凹凸形状を有している。このセパレータ 3 0 に関する詳しい説明に先立って、説明の便宜上、まず、セパレータ 3 0 を用いて構成される燃料電池の全体構成について以下に説明する。

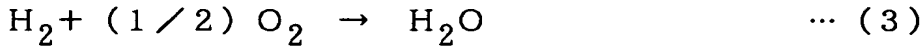
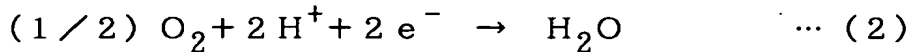
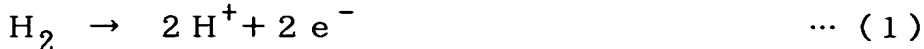
【 0 0 4 1 】

本発明の第 1 実施例であるセパレータ 3 0 を用いて構成した燃料電池は、構成単位である単セルを複数積層したスタック構造を有している。図 2 は、燃料電池の構成単位である単セル 2 8 の構成を例示する断面模式図、図 3 は、単セル 2 8 の構成を表わす分解斜視図、図 4 は、単セル 2 8 を積層したスタック構造 1 4 の外観を表わす斜視図である。

【 0 0 4 2 】

本実施例の燃料電池は、固体高分子型燃料電池である。固体高分子型燃料電池は、湿潤状態で良好な導電性（イオン伝導性）を示す固体高分子からなる膜を電解質層として備えている。このような燃料電池は、アノード側に水素を含有する燃料ガスの供給を受け、カソード側に酸素を含有する酸化ガスの供給を受けて、以下に示す電気化学反応を進行する。

【 0 0 4 3 】



【 0 0 4 4 】

(1) 式はアノードにおける反応、(2) 式はカソードにおける反応を表わし、燃料電池全体では(3) 式に示す反応が進行する。このように、燃料電池は、燃料電池に供給される燃料が有する化学エネルギーを直接電気エネルギーに変換するものであり、エネルギー効率が非常に高い装置として知られている。燃料電池の構成単位である単セル 2 8 は、図 2 に示すように、電解質膜 2 1 と、アノード 2 2 およびカソード 2 3 と、セパレータ 3 0 a, 3 0 b とから構成されている。

【 0 0 4 5 】

アノード 2 2 およびカソード 2 3 は、電解質膜 2 1 を両側から挟んでサンドイッチ構造を成すガス拡散電極である。セパレータ 3 0 a, 3 0 b は、このサンドイッチ構造をさらに両側から挟みつつ、アノード 2 2 およびカソード 2 3 との間に、燃料ガスおよび酸化ガスの流路を形成する。アノード 2 2 とセパレータ 3 0 a との間には燃料ガス流路 2 4 P が形成されており、カソード 2 3 とセパレータ 3 0 b との間には酸化ガス流路 2 5 P が形成されている。実際に燃料電池を組み立てるときには、上記単セル 2 8 を所定の枚数積層してスタック構造 1 4 を形成する。

【 0 0 4 6 】

図 2 では、各セパレータ 3 0 a, 3 0 b の片面においてだけガス流路を成すリブが形成されているように表わされているが、実際の燃料電池では、図 3 に示すように、各セパレータ 3 0 a, 3 0 b は、その両方の面にそれぞれリブ 5 4 およびリブ 5 5 を形成している。セパレータ 3 0 a, 3 0 b のそれぞれの片面に形成されたリブ 5 4 は隣接するアノード 2 2 との間で燃料ガス流路 2 4 P を形成し、セパレータ 3 0 の他面に形成されたリブ 5 5 は隣接する単セルが備えるカソード 2 3 との間で酸化ガス流路 2 5 P を形成する。したがって、セパレータ 3 0 a, 3 0 b は、ガス拡散電極との間でガスの流路を形成すると共に、隣接する単セル

間で燃料ガスと酸化ガスとの流れを分離する役割を果たしている。このように、セパレータ 3 0 a, 3 0 b は、実際に組み立てられる燃料電池では、形態上、あるいは働きの上で区別はなく、以後、セパレータ 3 0 と総称する。

【 0 0 4 7 】

なお、各セパレータの表面に形成されたリブ 5 4, 5 5 の形状は、ガス流路を形成してガス拡散電極に対して燃料ガスまたは酸化ガスを供給可能であれば良い。本実施例では、各セパレータの表面に形成されたリブ 5 4, 5 5 は平行に形成された複数の溝状の構造とした。図 2 では、単セル 2 8 の構成を模式的に表わすために、燃料ガス流路 2 4 P と酸化ガス流路 2 5 P とを平行に表わしたが、燃料電池を組み立てる際に実際に用いるセパレータ 3 0 では、各セパレータ 3 0 の両面で、リブ 5 4 とリブ 5 5 とがそれぞれ直交する方向となるように、リブ 5 4, 5 5 を形成した。

【 0 0 4 8 】

電解質膜 2 1 は、固体高分子材料、例えばフッ素系樹脂により形成されたプロトン伝導性のイオン交換膜であり、湿潤状態で良好な電気伝導性を示す。本実施例では、ナフィオン膜（デュポン社製）を使用した。電解質膜 2 1 の表面には、触媒としての白金または白金と他の金属からなる合金が塗布されている。

【 0 0 4 9 】

アノード 2 2 およびカソード 2 3 は、共に炭素繊維からなる糸で織成したカーボנקロスにより形成されている。なお、本実施例では、アノード 2 2 およびカソード 2 3 をカーボנקロスにより形成したが、炭素繊維からなるカーボンペーパーまたはカーボンフェルトにより形成する構成も好適である。

【 0 0 5 0 】

セパレータ 3 0 は、既述したように、金属製の基板部 6 0 上に 3 層のコート層が形成されている。このセパレータ 3 0 の周辺部には、4 つの穴構造が設けられている。燃料ガス流路 2 4 P を形成するリブ 5 4 を連絡する燃料ガス孔 5 0, 5 1 と、酸化ガス流路 2 5 P を形成するリブ 5 5 を連絡する酸化ガス孔 5 2, 5 3 である。燃料電池を組み立てたときには、各セパレータ 3 0 が備える燃料ガス孔 5 0, 5 1 はそれぞれ、燃料電池内部をその積層方向に貫通する燃料ガス供給マニ

ホールドおよび燃料ガス排出マニホールドを形成する。また、各セパレータ 3 0 が備える酸化ガス孔 5 2, 5 3 は、同じく燃料電池内部をその積層方向に貫通する酸化ガス供給マニホールドおよび酸化ガス排出マニホールドをそれぞれ形成する。

【 0 0 5 1 】

以上説明した各部材を備える燃料電池を組み立てるときには、セパレータ 3 0、アノード 2 2、電解質膜 2 1、カソード 2 3、セパレータ 3 0 の順序で順次重ね合わせ、その両端にさらに集電板 3 6, 3 7、絶縁板 3 8, 3 9、エンドプレート 4 0, 4 1 を配置して、図 4 に示すスタック構造 1 4 を完成する。集電板 3 6, 3 7 にはそれぞれ出力端子 3 6 A, 3 7 A が設けられており、燃料電池で生じた起電力を出力可能となっている。

【 0 0 5 2 】

エンドプレート 4 0 は、図 4 に示すように 2 つの穴構造を備えている。一つは燃料ガス供給孔 4 2、もう一つは酸化ガス供給孔 4 4 である。エンドプレート 4 0 と隣接する絶縁板 3 8 および集電板 3 6 は、エンドプレート 4 0 が備える 2 つの穴構造と対応する位置に同様の 2 つの穴構造を形成している。この燃料ガス供給孔 4 2 は、セパレータ 3 0 の備える燃料ガス孔 5 0 の中央部に開口している。なお、燃料電池を動作させるときには、燃料ガス供給孔 4 2 と図示しない燃料供給装置とが接続され、水素リッチな燃料ガスが燃料電池内部に供給される。同様に、酸化ガス供給孔 4 4 は前記セパレータ 3 0 の備える酸化ガス孔 5 2 の中央部に対応する位置に形成されている。燃料電池を動作させるときには、この酸化ガス供給孔 4 4 と図示しない酸化ガス供給装置とが接続され、酸素を含有する酸化ガスが燃料電池内部に供給される。ここで、燃料ガス供給装置と酸化ガス供給装置は、それぞれのガスに対して所定量の加湿および加圧を行なって燃料電池に供給する装置である。

【 0 0 5 3 】

また、エンドプレート 4 1 は、エンドプレート 4 0 とは異なる位置に、2 つの穴構造である燃料ガス排出孔と酸化ガス排出孔（図示せず）とを備えている。絶縁板 3 9、集電板 3 7 もまたエンドプレート 4 1 と同様の位置に、それぞれ 2 つ

の穴構造を形成している。エンドプレート 4 1 が備える穴構造の一つである燃料ガス排出孔は、セパレータ 3 0 の備える燃料ガス孔 5 1 の中央部に対応する位置に開口している。もう一つの穴構造である酸化ガス排出孔は、セパレータ 3 0 の備える酸化ガス孔 5 3 の中央部に対応する位置に開口している。燃料電池を動作させるときには、上記燃料ガス排出孔には図示しない燃料ガス排出装置が接続され、上記酸化ガス排出孔には図示しない酸化ガス排出装置が接続される。燃料電池の内部には、既述したように、単セル内の流路である燃料ガス流路 2 4 P と燃料ガス供給マニホールドと燃料ガス排出マニホールドとが形成されているが、これらの流路によって、燃料電池の内部では、上記燃料ガス供給孔 4 2 から燃料ガス排出孔までの間は、燃料ガスが流通可能となるように連通している。また、燃料電池の内部には、既述したように、単セル内の流路である酸化ガス流路 2 5 P と酸化ガス供給マニホールドと酸化ガス排出マニホールドとが形成されているが、これらの流路によって、燃料電池の内部では、上記酸化ガス供給孔 4 4 から酸化ガス排出孔までの間は、酸化ガスが流通可能となるように連通している。

【 0 0 5 4 】

以上説明した各部材からなるスタック構造 1 4 は、その積層方向に所定の押圧力がかかった状態で保持され、燃料電池が完成する。スタック構造 1 4 を押圧する構成については図示は省略した。

【 0 0 5 5 】

次に、以上のような構成を備えた燃料電池における燃料ガスおよび酸化ガスの流れについて説明する。燃料ガスは、上記した所定の燃料ガス供給装置から、エンドプレート 4 0 に形成された燃料ガス供給孔 4 2 を経て燃料電池内部に導入される。燃料電池内部で燃料ガスは、燃料ガス供給マニホールドを介して各単セル 2 8 が備える燃料ガス流路 2 4 P に供給され、各単セル 2 8 のアノード側で進行する電気化学反応に供される。燃料ガス流路 2 4 P から排出された燃料ガスは、燃料ガス排出マニホールドに集合して、エンドプレート 4 1 が備える既述した燃料ガス排出孔に達し、この燃料ガス排出孔から燃料電池の外部へ排出されて、所定の燃料ガス排出装置に導かれる。

【 0 0 5 6 】

同様に酸化ガスは、上記した所定の酸化ガス供給装置から、エンドプレート 40 に形成された酸化ガス供給孔 44 を経て燃料電池内部に導入される。燃料電池内部で酸化ガスは、酸化ガス供給マニホールドを介して各単セル 28 が備える酸化ガス流路 25 P に供給され、各単セル 28 のカソード側で進行する電気化学反応に供される。酸化ガス流路 25 P から排出された酸化ガスは、酸化ガス排出マニホールドに集合して、エンドプレート 41 が備える既述した酸化ガス排出孔に達し、この酸化ガス排出孔から上記所定の酸化ガス排出装置に排出される。

【 0 0 5 7 】

(2) 第 1 実施例のセパレータ 30 の構成と製造工程および作用・効果：

以下に、上記燃料電池が備えるセパレータ 30 の構成について説明する。セパレータ 30 は、既述したように、基板部 60 と、下地コート層 62 と、貴金属コート層 64 と、カーボンコート層 66 とから構成されている。図 5 は、セパレータ 30 の製造工程を表わす説明図である。

【 0 0 5 8 】

セパレータ 30 を製造する際には、まず、ステンレスの薄板を機械的にプレスすることによって、その両面に所定の凹凸形状を有する基板部 60 を成形する（ステップ S100）。ここで、プレス成形によって形成される凹凸形状は、セパレータ 30 を燃料電池に組み込んだときに、各々の面に形成された凹凸形状によって、既述した燃料ガス流路 24 P および酸化ガス流路 25 P を形成可能となるものである。ステップ S100 においてステンレス板を機械的にプレスして所定の凹凸形状に成形した基板部 60 としては、ステンレス板を張り出し成形したものや曲げ加工品、あるいは、ステンレス板を部分的に打ち抜いて成形するハーフシャ品などを用いることができる。

【 0 0 5 9 】

次に、ステップ S100 で得た基板部 60 に対して表面処理を施し、基板部 60 を構成するステンレスの表面に形成された不動態層を除去するとともに、不動態層を除去した基板部 60 上に、銅からなる下地コート層 62 を形成する（ステップ S110）。ステンレスは、その表面に、導電性を有しない不動態層が形成されているが、このように不動態層を除去した上で下地コート層 62 を形成する

ことによって、ステンレス表面に形成された不動態層に起因してセパレータ 3 0 の導電性が低下してしまう（基板部 6 0 上にさらに形成する貴金属コート層 6 4 との間の接触抵抗が上昇してしまう）のを防止している。なお、下地コート層 6 2 は、電解メッキ、無電解メッキのいずれの方法によっても形成することができる。また、本実施例では、下地コート層 6 2 の厚みは $10\ \mu\text{m}$ とした。

【 0 0 6 0 】

下地コート層 6 2 を形成すると、次に、その表面に、銀からなる貴金属コート層 6 4 を形成する（ステップ S 1 2 0）。この貴金属コート層 6 4 も、電解メッキあるいは無電解メッキなどの方法によって容易に形成することができる。本実施例では、貴金属コート層 6 4 の厚みは、 $2\ \mu\text{m}$ とした。

【 0 0 6 1 】

貴金属コート層 6 4 を形成すると、その表面に、炭素材料を含有する部材からなるカーボンコート層 6 6 をさらに形成し（ステップ S 1 3 0）、セパレータ 3 0 を完成する。このカーボンコート層 6 6 は、黒鉛粒子およびカーボンブラックを炭素材料として含有し、この炭素材料にバインダを混合して形成されている。ここで、用いる黒鉛としては、人造黒鉛、鱗片状黒鉛、鱗状黒鉛、土状黒鉛などを挙げることができ、カーボンブラックとしては、チャンネルブラック、ファーンズブラック、アセチレンブラック、ケッチェンブラックなどを挙げることができる。また、バインダとしては、燃料電池の内部環境（酸性条件下や所定の高温下）において十分に安定な樹脂系材料あるいはゴム系材料などを用いればよい。このような樹脂系材料としては、例えば、フッ素樹脂、アクリル樹脂、ポリエステル樹脂、ウレタン樹脂、フェノール樹脂、フェノールエポキシ樹脂などを挙げることができる。また、ゴム系材料としては、例えば、スチレン-ブタジエンゴム（SBR）、ブチルゴム（IIR）、エチレン-プロピレンゴム（FPDM）、フッ素ゴム、ニトリルゴム（NBR）、クロロプロピレンゴム（CR）などを挙げることができる。これらの樹脂系材料やゴム系材料を単独、あるいはこれらのうちの複数のものを組み合わせて、バインダとして用いればよい。カーボンコート層 6 6 を形成するには、上記炭素材料と溶解したバインダとを混合したものに、下地コート層 6 2 および貴金属コート層 6 4 を形成した基板部 6 0 を浸漬し

たり、あるいは上記混合物を貴金属コート層 6 4 上にスプレーすればよい。また、上記混合物を、カーテンフロー塗装により塗布することもできる。なお、本実施例では、カーボンコート層 6 6 の厚みは、 $40\mu\text{m}$ とした。

【0062】

なお、上記した説明では、基板部 6 0 は、プレス成形によって、燃料ガス流路 2 4 P および酸化ガス流路 2 5 P を形成するための凹凸形状を、その各々の面に形成することとしたが、異なる構成とすることとしてもよい。例えば、一方の面に燃料ガス流路 2 4 P を形成するための凹凸形状を形成した薄板と、一方の面に酸化ガス流路 2 5 P を形成するための凹凸形状を形成した他の薄板とを用意し、これら 2 枚の薄板を貼り合わせることによって基板部 6 0 を形成することとしてもよい。

【0063】

以上のように構成されたセパレータ 3 0 によれば、ステンレスからなる基板部 6 0 を銀からなる貴金属コート層 6 4 で覆い、さらに、炭素材料を含有するカーボンコート層 6 6 で被覆しているため、耐食性および導電性に優れた燃料電池用セパレータを得ることができる。また、このようなセパレータ 3 0 を用いて燃料電池を構成することによって、耐久性に優れ、十分な電池性能を有する燃料電池を得ることができる。

【0064】

既述したように、発電を行なっている燃料電池の内部は酸性度が非常に強くなるため、このような環境下では、銀によってセパレータを被覆してもセパレータを被覆している銀自身が次第に腐食されてしまうおそれがあるが、本実施例では、銀からなる貴金属コート層 6 4 をさらにカーボンコート層 6 6 によって被覆しているため、銀がさらされる環境がより穏やか（pH が中性より）になり、貴金属コート層 6 4 が腐食してしまうのを十分に抑えることができる。カーボンコート層 6 6 は炭素材料をバインダによって結着させてなり、このカーボンコート層 6 6 は、貴金属コート層 6 4 の表面が直接燃料電池の内部環境にさらされるのを防いでいる。ここで、カーボンコート層 6 6 を構成している炭素材料は、ごく微量の水を徐々に浸透させる性質を有しており、さらに、炭素材料とバインダとの

界面を介してもごく微量の水が徐々に浸透するおそれがあるが、貴金属コート層 6 4 上にカーボンコート層 6 6 を設けることで、貴金属コート層 6 4 の表面とセパレータ 3 0 の表面（カーボンコート層 6 6 の表面）との間には、十分なプロトン濃度勾配が生じ、セパレータ 3 0 の周囲の環境が $pH 2$ となった場合にも、カーボンコート層 6 6 に覆われた貴金属コート層 6 4 の表面は、はるかに穏やかな（ pH が中性よりの）環境となる。このような環境下では、上記した燃料電池の内部環境に直接さらされる場合とは異なり、イオン化傾向が非常に小さい貴金属である銀は十分に安定である。したがって、銀によって形成される貴金属コート層 6 4 は、燃料電池の内部が上記したように酸性度が強い状態となり、カーボンコート層 6 6 が備える炭素材料を介して水が浸透してきても、燃料電池の運転中に腐食が進行してしまうおそれがない。このように貴金属コート層 6 4 が腐食するのを防止できることにより、貴金属コート層 6 4 によって覆われる下地コート層 6 2 および基板部 6 0 が腐食するのを十分に抑えることができる。炭素材料とバインダとからなるカーボンコート層 6 6 も十分な耐食性を有しているため、セパレータ 3 0 全体は高い耐食性を示し、これを用いる燃料電池の耐久性も充分となる。

【 0 0 6 5 】

なお、炭素材料を備えるカーボンコート層 6 6 は、上記したように貴金属コート層 6 4 における腐食の進行を十分に抑えるという効果に加えて、貴金属コート層 6 4 の表面において、燃料電池が長時間発電を行なう間にたとえ腐食によってごくわずかな金属イオン（銀イオン）が貴金属コート層 6 4 の表面から溶出した場合にも、この溶出した金属イオンがカーボンコート層 6 6 を透過してセパレータ外に排出されるのを抑えるという効果を有している。このように、耐食性に優れた銀によって貴金属コート層 6 4 を形成し、炭素材料を備えるカーボンコート層 6 6 によって貴金属コート層 6 4 を被覆することで、セパレータ（を形成する金属部）の腐食の進行を抑えると共に、微量に生じる金属イオンに起因する問題が生じるのを抑えることができるため、このようなセパレータ 3 0 を用いることで、耐久性に優れた燃料電池を得ることができる。

【 0 0 6 6 】

また、貴金属コート層 6 4 を構成する銀は、酸化されて不動態を形成することがないため、カーボンコート層 6 6 が備える炭素材料を介して貴金属コート層 6 4 の表面にまで水が浸透しても、この水による酸化を受けて貴金属コート層 6 4 の表面に不動態層が形成され、セパレータ 3 0 の導電性が低下してしまうことがない。すなわち、金属は、水や酸素の存在下において、腐食して金属イオンが溶出する他に、その表面に導電性が不十分である酸化物被膜を形成する場合があるが、貴金属である銀は、非常に安定であるため酸素との親和力が弱く、不動態を形成することがない。貴金属コート層 6 4 の下に形成された下地コート層 6 2 は、貴金属コート層 6 4 によって覆われているため、この下地コート層 6 2 もまた、表面に不動態層が形成されてセパレータ 3 0 の導電性を低下させてしまうことがない。また、基板部 6 0 を構成するステンレスは、本来その表面が不動態層によって覆われているが、基板部 6 0 上に下地コート層 6 2 を形成する際に、この不動態層を取り除いた上で下地コート層 6 2 を形成しているため、基板部 6 0 表面の不動態層に起因してセパレータ 3 0 の導電性が低下してしまうことがない。もとより、カーボンコート層 6 6 が備える炭素材料もまた、電池環境下で不動態層を形成することがないため、燃料電池の動作中にセパレータ 3 0 の表面で接触抵抗が上昇することがなく、セパレータ 3 0 を備える燃料電池の内部抵抗が上昇してしまうことがない。なお、これら金属の腐食および不動態形成に関しては、後でさらに詳しく説明する。

【 0 0 6 7 】

なお、後述するように、貴金属の中でも最もイオン化傾向が小さい金は、燃料電池の内部環境においても極めて安定である。したがって、燃料電池用ガスセパレータの耐食性を十分に確保することは、金によって構成され、基板部を保護するのに十分な厚さを有する貴金属層をセパレータ上に形成することによっても実現可能であるが、上記実施例の構成とすることで、セパレータを製造するためのコストを十分に抑えることが可能となる。すなわち、本実施例の構成によれば、炭素材料を備えるカーボンコート層 6 6 によって貴金属コート層 6 4 を被覆するため、貴金属層である貴金属コート層 6 4 の厚みを、金によって基板部を保護する場合に要する貴金属層の厚みに比べてはるかに薄く（貴金属量を少なく）する

ことができる。また、貴金属コート層 6 4 をカーボンコート層 6 6 で覆うことによって、必ずしも金を用いる必要がなくなり、金よりは卑であるがより安価な貴金属である銀を用いて貴金属コート層 6 4 を形成することにより、十分な耐食性を実現することができる。

【 0 0 6 8 】

もとより、本実施例のセパレータ 3 0 において、銀に代えて金を用いて貴金属コート層 6 4 を形成しても、金からなる貴金属層だけによってセパレータの耐食性を確保する構成に比べてはるかに金の層（貴金属コート層 6 4）の厚さを薄くしてコストを抑えつつ、十分に耐食性に優れたセパレータを得ることができる。

【 0 0 6 9 】

なお、金属のメッキ層は、微小な孔であるピンホール（以下、メッキのミクロ欠陥と呼ぶ）を有しており、このメッキのミクロ欠陥を介して、メッキ層の下側の層において腐食が進行するおそれがあるため、一般には、メッキ層の厚さを十分に確保することによってこのメッキ層のミクロ欠陥を減少させ、メッキ層の下側の層が腐食するのを防止する。本実施例のセパレータ 3 0 では、貴金属コート層 6 4 と基板部 6 0 との間に、卑金属の中では比較的イオン化傾向が小さい銅からなる下地コート層 6 2 を設けているため、貴金属コート層 6 4 において多少のメッキのミクロ欠陥があっても、下地コート層 6 2 によって基板部 6 0 が保護される。したがって、貴金属コート層 6 4 の厚さを抑えつつ基板部 6 0、ひいてはセパレータ 3 0 全体の耐食性を十分に確保することができる。もとより、貴金属コート層 6 4 の厚さが基板部 6 0 を保護するのに十分な厚さであれば、下地コート層 6 2 は設けないこととしてもよい。貴金属コート層 6 4 の厚さや、下地コート層 6 2 の厚さ、あるいは下地コート層 6 2 の有無は、貴金属からなる貴金属コート層 6 4 の厚さを、腐食を防ぐのに十分な厚さにするのに要するコストと、一旦卑金属でメッキして下地コート層 6 2 を形成するのに要するコスト、あるいは要求する耐食性の程度などに応じて適宜選択すればよい。なお、下地コート層 6 2 は、上記したように基板部 6 0 を保護する他に、基板部 6 0 と貴金属コート層 6 4 との間の密着性を向上させるという効果も奏する。

【 0 0 7 0 】

また、本実施例のセパレータ 3 0 では、基板部 6 0 はステンレスによって構成したが、導電性や成形性に優れた他の金属、例えばアルミニウムなどによって構成することとしてもよい。ここで、アルミニウムのようにイオン化傾向の大きな金属によって基板部 6 0 を構成する場合には、イオン化傾向が非常に小さい貴金属を直接メッキすることが困難であるため（メッキ浴によって基板部 6 0 が侵されるおそれがあるため）、よりイオン化傾向の小さな卑金属によって下地コート層 6 2 を形成することによって、貴金属からなる貴金属コート層 6 4 の形成を容易にすることができる。

【 0 0 7 1 】

図 6 は、炭素材料を備えるカーボンコート層 6 6 の構成を模式的に表わす説明図である。図 6 に示すように、カーボンコート層 6 6 は、黒鉛粒子同士の間、これより粒子の大きさが小さいカーボンブラックが配設されてなり、このようにカーボンコート層 6 6 の厚さ方向にわたって炭素材料が互いに接続して積み重なることによって、カーボンコート層 6 6 全体で十分な導電性を確保している。ここで、炭素材料を結着させるバインダは、耐食性に優れており、また、炭素材料からなる粒子間の隙間を埋めることによって、炭素粒子間の隙間を通じて水が浸透するのを防止する役目を果たしている。このように、充分量のバインダを用いることによって、貴金属コート層 6 4 にまで到達する水の量を十分に抑えることができ、これによってセパレータ 3 0 全体の耐食性を向上させることができる。したがって、カーボンコート層 6 6 が備える炭素材料の量とバインダの量とは、カーボンコート層 6 6 全体で十分な導電性が確保できる範囲で適宜選択すればよい。

【 0 0 7 2 】

なお、セパレータ 3 0 においては、燃料電池内で隣接する部材と接触する領域で十分な導電性が確保されていればよい。したがって、カーボンコート層 6 6 では、少なくとも、上記隣接する部材と接触する領域において充分量の炭素材料を備えていればよく、それ以外の領域では、必ずしも充分量の炭素材料を備えている必要はない。セパレータの導電性に関与しない領域では、単に充分量のバインダを備えることによって、下側の金属層を保護しその腐食を抑える効果を得るこ

とができる。また、炭素材料を備えるカーボンコート層 6 6 は、セパレータ外部の環境から遮断して下側の層を保護する性能が十分に確保できるならば、バインダを用いることなく形成することとしてもよい。例えば熱膨張黒鉛は、層構造を成す周知の炭素材料であって、加圧を行なうだけでバインダを用いなくても互いに結着させることができるが、この熱膨張黒鉛を加圧してなる層を浸透する水の量が許容範囲であれば、バインダを用いずに熱膨張黒鉛を加圧成形することによってカーボンコート層 6 6 を形成することも可能である。

【 0 0 7 3 】

また、上記実施例では、貴金属コート層 6 4 の直上にカーボンコート層 6 6 を形成することとしたが、貴金属コート層 6 4 とカーボンコート層 6 6 との間に介在する所定のコート層をさらに形成することとしても良い。このようなコート層を、十分な耐食性および導電性を有する金属などにより形成する場合にも、本実施例の既述した効果が得られると共に、上記コート層によって、貴金属コート層 6 4 など下側の層を保護し、貴金属コート層 6 4 とカーボンコート層 6 6 との間の密着性を向上させる効果を得ることができる。

【 0 0 7 4 】

(3) 金属の腐食性に関する説明：

以下に、セパレータを構成し得る金属と、腐食および不動態形成との関係について説明する。既述したように、腐食とは、環境中に水や酸素などが存在することによって金属が酸化され、金属イオンが溶出する現象を指す。このように腐食とは、金属が酸化することによって劣化することをいうが、金属が酸化する現象の中で特に、金属の表面が酸化されて酸化物被膜（不動態被膜）を形成することを、不動態形成という。ここで、金属が腐食すると、既述したように、腐食によって溶出した金属イオンが固体高分子電解質膜に入り込んで電池性能を低下させてしまう。また、不動態が形成されると、不動態は十分な導電性を有しないためセパレータの導電性が低下し（セパレータと隣接部材との間の接触抵抗が増加し）、電池性能を低下させてしまう。したがって、燃料電池の性能低下を引き起こさない十分な耐久性をセパレータが備えるには、上記した腐食を受け難く（耐食性に優れ）高い導電性を有する（不動態を形成しない）ことが必要である。

【 0 0 7 5 】

金属が、腐食や不動態の形成を起こすかどうかは、その金属のエネルギー状態が、どのような反応によってより安定な状態となるかということと、その金属の反応性によって決まる。すなわち、その金属が腐食することによってエネルギー状態が安定化する場合には腐食が進行し、不動態形成によってエネルギー状態が安定化する場合には不動態を形成し、このような反応を起こさない状態がエネルギー的に安定であれば腐食も不動態形成も起こらない。また、腐食と不導体形成のうちのいずれかの反応を起こす状態がエネルギー的に安定となる場合には、その反応が進行する速度は、金属のイオン化傾向や酸素との親和力に従って定まる。

【 0 0 7 6 】

それぞれの金属は、その金属がおかれた環境に応じて、いずれの反応を起こすのが安定であるか、あるいは、反応を起こさないことが安定であるか、ということが定まっている。種々の金属に関するこのような性質を図 7～図 10 に示す。図 7～図 10 は、それぞれの金属を、pH や電位の異なる種々の環境下においたときに、どのような状態がより安定であるかを表わしており、以下、このような図を腐食図と呼ぶ。これらの腐食図においては、金属が腐食する状態がエネルギー的に安定である領域を腐食域と呼び、酸素と結びついて不動態を形成する状態がエネルギー的に安定である領域を不動態域と呼び、これらの反応を起こさない状態がエネルギー的に安定である領域を安定域と呼ぶ。なお、図 8～図 10 に示した各腐食図では、腐食域、不動態域、安定域のそれぞれに付したハッチの種類については、図 7 と同一とした。

【 0 0 7 7 】

図 7 (A)、および、図 7～図 10 に示した他の腐食図では、その中央部に平行四辺形型の領域が描かれているが、この領域は水が安定して存在しうる領域（以下、水の安定化領域と呼ぶ）である。水の安定化領域ではない条件下では、水の分解が進行して、水素や酸素を発生する。燃料電池では、内部で進行する電気化学反応に伴って水が生成されるため（式（1）～（3）を参照）、燃料電池の内部環境は、当然にこの水の安定化領域内に含まれると考えられる。また、既述したように、燃料電池の内部環境は、次第に酸性側に傾き pH 2 程度に達すると

いわれている。したがって、図 7 に示した腐食図においては、燃料電池の内部環境に相当する領域（以下、仮想的に燃料電池領域と呼ぶ）は、上記水の安定化領域内のうち、 $\text{pH } 2 \sim 7$ の範囲内に含まれると考えられる。このような燃料電池領域を含むと考えられる領域において、各金属が腐食域、不動態域、安定域のうちのいずれに属するかによって、その金属が燃料電池の内部環境でどのような影響を受けるかを知ることができる。さらに、腐食図に基づいた金属の反応性を考慮することによって、その金属を燃料電池用ガスセパレータとして用いることの是非を検討することが可能となる。

【 0 0 7 8 】

図 7 に示すように、酸化などを受けにくい安定な金属である貴金属は、水の安定化領域内で広く安定域を有している。したがって、このような貴金属を用いてセパレータを被覆することによって、セパレータの導電性を十分に維持することができる。特に金は、水の安定化領域内全体が安定域となっているため、燃料電池の内部環境に直接さらしても、金自身が腐食したり不動態を形成したりするおそれは実質的に無いと考えられる。貴金属のうち、イリジウム、白金、ロジウム、ルテニウム、パラジウムといった白金族の貴金属は、水の安定化領域内に不動態域を有しており、燃料電池の内部環境において、不動態を形成する状態がエネルギー的に安定となる場合があると考えられるが、これらの貴金属は酸素との親和力が非常に小さいため、燃料電池の内部環境が不動態域に相当する状態であっても、実際に不動態を形成する速度はきわめて遅い。したがって、これらの貴金属によって上記実施例の貴金属コート層 6 4 を形成すれば、炭素材料を備えるカーボンコート層 6 6 でさらにその表面を被覆することによって貴金属コート層 6 4 の表面はより穏やかな環境となるため、貴金属コート層 6 4 は腐食を受けないばかりでなく不動態の形成も十分に防止することができ、腐食を起こさず導電性の低下を引き起こさない良好なセパレータを得ることができる。

【 0 0 7 9 】

また、貴金属のうちの銀は、水の安定化領域内に腐食域を有しており、燃料電池の内部環境において、腐食して金属イオンが溶出する状態がエネルギー的に安定となるおそれがあるが、貴金属である銀はイオン化傾向が非常に小さいため、燃

料電池の内部環境が腐食域に相当する状態であっても、実際に腐食が進行する速度はきわめて遅い。したがって、銀のような貴金属によって上記実施例の貴金属コート層 6 4 を形成すれば、炭素材料を備えるカーボンコート層 6 6 でさらにその表面を被覆することによって貴金属コート層 6 4 の表面はより穏やかな環境となるため、上記貴金属が腐食する速度はさらに遅くなり、貴金属コート層 6 4 は不動態を形成しないばかりでなく腐食の進行も十分に防止することができ、腐食を起こさず導電性の低下を引き起こさない良好なセパレータを得ることができる。

【 0 0 8 0 】

図 8 ～ 図 1 0 に示したように、卑金属は、水の安定化領域のほとんどは腐食域あるいは不動態域によって占められている。卑金属は、貴金属に比べてはるかにイオン化傾向が大きいいため、周囲の環境がより穏やか（pH が中性より）であっても、腐食域内にある限り腐食の速度は速い。また、卑金属は、貴金属に比べてはるかに酸素との親和力が大きいいため、周囲の環境がより穏やかであっても、不動態域内にある限り不動態を形成する速度は速い。上記のように、銀以上に貴である貴金属によって貴金属コート層 6 4 を形成することによって、より薄く形成することが可能な貴金属層である貴金属コート層 6 4 と、炭素を含有するカーボンコート層 6 6 とを設けることで、金属セパレータの耐食性を十分に確保することが可能となる。

【 0 0 8 1 】

（４）種々の材料をセパレータ 3 0 に適用した際の実験による評価：

（４－１）接触抵抗と腐食電流の測定：

貴金属からなる貴金属コート層 6 4 と、炭素材料を備えるカーボンコート層 6 6 とを備えるセパレータの耐食性および導電性（接触抵抗）について、実験により調べた結果を以下に示す。図 1 1 は、貴金属コート層 6 4 を構成する貴金属や、下地コート層 6 2 を構成する卑金属として種々の金属を選択して、その性能を調べた結果を表わす説明図である。ここでは、厚さ 0. 0 1 μ m で金によって形成される貴金属コート層 6 4 とニッケルによって形成される下地コート層 6 2 とを備えるセパレータ（セパレータ A）と、厚さ 0. 0 1 μ m で金によって形成さ

れる貴金属コート層 6 4 と銅によって形成される下地コート層 6 2 とを備えるセパレータ（セパレータ B）と、厚さ $2\ \mu\text{m}$ で銀によって形成される貴金属コート層 6 4 と銅によって形成される下地コート層 6 2 とを備えるセパレータ（セパレータ C）と、厚さ $10\ \mu\text{m}$ でスズによって形成されるスズ層（貴金属コート層 6 4 に対応する）とニッケルによって形成される下地コート層 6 2 とを備えるセパレータ（セパレータ D）とを用いて比較を行なった。なお、セパレータ D において、スズは貴金属ではないが、貴金属層の性能を評価するために、貴金属コート層 6 4 に相当する層を貴金属ではないスズで形成したセパレータ D を用意した。これらセパレータ A～D は、炭素材料を備えるカーボンコート層 6 6 を有しているが、さらに、上記各セパレータ（セパレータ A～C）に対応して、カーボンコート層 6 6 を備えないセパレータ（セパレータ A' ～C' ）についても比較を行なった。なお、図 1 1 に示したセパレータでは、下地コート層 6 2 の厚さは $10\ \mu\text{m}$ 、カーボンコート層 6 6 を設ける場合にはその厚さは $10\ \mu\text{m}$ とし、基板部 6 0 はアルミニウムによって形成した。

【 0 0 8 2 】

図 1 1 は、上記した各セパレータのそれぞれについて、不動態の形成に起因する接触抵抗の増加と、腐食に起因して生じる腐食電流について調べた結果を表わす。接触抵抗の変化を調べた結果とは、上記した各セパレータを燃料電池の内部環境と類似した環境中に所定時間さらし、その前後での接触抵抗の変化を調べた結果である。すなわち、カーボンコート層 6 6 を備えるセパレータ A～D については、 80°C で pH 2 の硫酸中に 100 時間浸漬し、カーボンコート層 6 6 を備えないセパレータ A' ～D' については、 80°C で pH 2 の緩衝液中に 24 時間浸漬し、それぞれ、その前後での接触抵抗の変化を調べた。セパレータの接触抵抗の測定は、各セパレータを、カーボクロス（既述した単セル 2 8 内で隣接する部材であるガス拡散電極に対応する）と重ね合わせて加圧しながら保持し、ここに定電流（1 A）を流してその際の電圧降下を測定し、電流値と電圧値とから抵抗値を求めて、上記した酸による処理の前後での抵抗値（接触面積を乗じた値）の変化を調べた（単位は、 $\text{m}\Omega\text{cm}^2$ ）。なお、ここでは、加圧して保持するセパレータとガス拡散電極とを合わせた全体の抵抗値を測定しており、セパレー

タ表面で生じる接触抵抗を含めた、燃料電池スタックの様子を反映して加圧などによる影響を受ける総合的な抵抗値によって比較を行なっている。

【 0 0 8 3 】

また、腐食電流について調べた結果とは、燃料電池の内部環境と類似した環境中で腐食電流が生じるかどうかを調べた結果であり、これによって腐食の有無が判断できる。図 1 2 は、各セパレータについて腐食電流を測定する様子を表わす説明図である。腐食電流の測定は、試料である各セパレータを一方の電極とし、その対極として黒鉛電極を用い、pH 2、80℃の硫酸中で、電氣的に接続した上記それぞれのセパレータと黒鉛電極との間に流れる電流を、腐食電流として測定した。なお、ここでは、腐食電流は、上記したように黒鉛電極を対極として用いたときに流れる電流値を、セパレータの単位面積あたりに換算し、電流密度（単位は、 $\mu A / cm^2$ ）として評価している。それぞれのセパレータについての測定結果の数値は、図 1 1 中に、四角で囲んで示している。測定の対象としているセパレータにおいて腐食が進行するときには、腐食の進行に伴って試料であるセパレータから金属イオン（図 1 2 では M^+ と表わす）が溶出すると共に電流が流れる。対象としているセパレータが上記溶液中で腐食しないときには、理論的には上記腐食電流は値 0 となる。しかしながら、腐食がほとんど進行しない場合にも、実際の測定値が値 0 として得られることは希であり、図 1 1 に示した結果では、腐食電流の測定値が負の値であるときには、腐食は起こっておらず長期的にも十分な耐食性を有しているものと判断して図中に示す測定値に「○」印を付し、腐食電流の測定値が正の値であっても非常に小さいときには、腐食の速度は非常におそくセパレータとしての使用に耐える可能性があると判断して図中の測定値に「△」印を付し、それよりも大きな値の腐食電流を示す時には、腐食の程度が許容できないと判断して図中の測定値に「×」印を付した。なお、このような腐食電流は、炭素材料からなるカーボンコート層 6 6 を有するセパレータ（セパレータ A, B, C, D）については、pH 2、80℃の硫酸中に 100 時間浸漬後、カーボンコート層 6 6 を有しないセパレータ（セパレータ A', B', C'）については、同様の硫酸中に 24 時間浸漬後に、それぞれ測定した。

【 0 0 8 4 】

図 1 1 に示したように、金の貴金属コート層 6 4 とニッケルの下地コート層 6 2 と炭素材料のカーボンコート層 6 6 とを備えるセパレータ A、金の貴金属コート層 6 4 と銅の下地コート層 6 2 と炭素材料のカーボンコート層 6 6 とを備えるセパレータ B、銀の貴金属コート層 6 4 と銅の下地コート層 6 2 と炭素材料のカーボンコート層 6 6 とを備えるセパレータ C はいずれも、接触抵抗は十分に小さく、上記した硫酸の処理を行なった後も接触抵抗の増加は小さく、また、上記硫酸中に 1 0 0 時間浸漬した後であっても腐食電流の値は十分に小さい。これに対し、上記セパレータ A ~ C に対応するセパレータであってカーボンコート層 6 6 を有しないセパレータ A' ~ C' は、接触抵抗はセパレータ A ~ C に比べて小さいものの、上記硫酸中に 2 4 時間浸漬後の腐食電流ははるかに大きい。また、貴金属コート層 6 4 に対応するスズ層とニッケルの下地コート層 6 2 と炭素材料のカーボンコート層 6 6 とを備えるセパレータ D は、炭素材料のカーボンコート層 6 6 を有するため、腐食電流は小さいものの、貴金属コート層 6 4 に対応する層が貴金属層ではないため、接触抵抗が大きい。このように、接触抵抗の増加は、セパレータ表面を薄い貴金属層で被覆することによって十分に抑えることができるが、腐食を十分に抑えるには、薄い（例えば、 $0.01\mu\text{m}$ 以上の厚さの）貴金属層の表面をさらに炭素材料を備えるカーボンコート層 6 6 で被覆することが必要である。なお、セパレータ A' および B' の貴金属コート層 6 4 を構成する金は実質的に腐食することはない、セパレータ C' の貴金属コート層 6 4 を構成する銀も短期的にはほとんど腐食しないため、図 1 1 でセパレータ A' ~ C' が示す腐食電流は、下地コート層 6 2 をおよび基板部 6 0 を構成する金属が腐食した結果である。

【 0 0 8 5 】

上記した結果とは異なり、貴金属コート層 6 4 に対応する層を卑金属によって形成した場合には、炭素材料を備えるカーボンコート層 6 6 によってセパレータ表面を被覆しても、貴金属コート層 6 4 に対応する層を構成する卑金属の（図 7 ~ 図 1 0 に示した）性質に従って、腐食あるいは不動態の形成が進行する。図 1 1 に示したセパレータ D は、貴金属コート層 6 4 に対応するスズ層と、ニッケルからなる下地コート層 6 2 と備えているが、このセパレータ D は、腐食電流は生

じないものの接触抵抗は非常に大きく、燃料電池用ガスセパレータとしては不適當である。図 9 (E) に示すように、スズは、水の安定化領域内の燃料電池領域を含むと思われる領域全体が不動態域となっており、貴金属コート層 6 4 に対応するスズ層は、カーボンコート層 6 6 によって被覆されていても、このスズ層の表面全体で不動態を形成してしまう。なお、スズは、その表面に不動態を形成すると、この不動態によって下側の層を腐食から保護するため、セパレータ D は腐食電流を生じない。

【 0 0 8 6 】

(4 - 2) 金属イオンの溶出量の測定 :

図 1 3 (A) ~ (D) は、それぞれ、上記セパレータ A, C, A', C' についてイオンの溶出試験を行なった結果を表わす。ここでは、各セパレータをそれぞれ、pH 2、80℃の硫酸中に 24 時間浸漬し、腐食によって硫酸中に溶出した金属イオン（貴金属コート層 6 4、下地コート層 6 2、基板部 6 0 のそれぞれを構成する金属のイオン）の量を測定した。なお、図 1 3 では、各セパレータが備える基板部の表面のうち、一つの面だけが被覆されているように表わされているが、実際には、各セパレータの表面全体が、下地コート層 6 2、貴金属コート層 6 4、カーボンコート層 6 6 などによって被覆されている。また、図中の数字は、上記した 24 時間の間に硫酸中に溶出した各金属イオンの量を、セパレータの単位面積あたりで表わしたものである（単位は $\mu\text{mol}/\text{cm}^2 \cdot \text{day}$ ）。

【 0 0 8 7 】

図 1 3 (C), (D) に示すように、セパレータ A', C' では、貴金属コート層 6 4 および下地コート層 6 2 によって被覆されていても、基板部 6 0 を構成するアルミニウムのイオンは、相当量が溶出する。なお、セパレータ A' の貴金属コート層 6 4 を構成する金は、安定域にあるため自身は溶出しないが、セパレータ C' の貴金属コート層 6 4 を構成する銀は、貴金属であっても腐食域にあるためわずかに溶出が検出される。また、セパレータ A' と C' とでは、どちらも貴金属からなる貴金属コート層 6 4 を備えているが、貴金属コート層 6 4 がより厚く形成されるセパレータ C' の方が、下側の下地コート層 6 2 および基板部 6 0 を構成する金属の溶出量が少ない。これは、メッキ厚を厚くすることによりメ

ツキのミクロ欠陥が減少し、下側の層がより充分に保護されるためと考えられる。

【 0 0 8 8 】

上記セパレータ A'、C' に対して、図 1 3 (A)、(B) に示すように、セパレータ A、C では、貴金属層である貴金属コート層 6 4 をさらに被覆するカーボンコート層 6 6 が設けられているため、金属イオンの溶出がほとんどなく、きわめて効果的にセパレータの腐食が抑えられている。なお、図 1 3 (A)、(B) においてセパレータ A の結果とセパレータ C の結果とを比較すると、セパレータ C の方が金属イオンの溶出量が少なく、ここでは金属イオンの溶出量は検出限界未満となっているが、これは、貴金属層である貴金属コート層 6 4 をより厚く形成することによって、金属イオンの溶出（腐食）を防ぐ効果をより高めることができるためと考えられる。

【 0 0 8 9 】

(4 - 3) 燃料電池の性能評価：

さらに、これらのセパレータを用いて構成した燃料電池の性能を調べた結果を図 1 4 に示す。図 1 4 では、既述したセパレータ A とセパレータ C とセパレータ D と、セパレータ C' のそれぞれを用いて単セルを構成し、この単セルに対して所定の負荷を接続して発電を行なわせ、単セルからの出力電圧の変化を調べた結果を示している。また、図 1 4 では、セパレータ C とセパレータ D とを備える単セルを用いて発電を行ない、その際の単セル全体の抵抗値の変化を調べた結果を併せて示している。単セルの出力電圧は、腐食が進行する場合には、金属イオンが電解質膜中に入り込むのに従って低下すると共に、セパレータにおける接触抵抗が増大する場合にも低下するため、出力電圧値の変化（低下）の様子から、セパレータの腐食状態と不動態形成の状態とを評価することができる。併せて示した単セル全体の抵抗値の変化からは、不動態の形成の様子を評価することができる。

【 0 0 9 0 】

図 1 4 に示すように、セパレータ A およびセパレータ C を用いて構成した単セルでは、長時間連続して発電を行なっても電圧降下は非常に緩やかである。また

、セパレータCを用いて構成した単セルでは、発電に伴って抵抗値が上昇することもない。したがって、これらのセパレータは、優れた耐食性を有していると共に、高い導電性を維持できるといえる。これに対し、セパレータDを用いて構成した単セルでは、時間の経過に伴う電圧降下の程度はそれほど大きくないものの、出力電圧値そのものが低い。さらに、セパレータDを用いて構成した単セルでは、発電に伴って抵抗値が大きく上昇している。これは、セパレータDを用いて構成した単セルでは、貴金属コート層64に対応するスズ層の表面に形成される不動態層によってセパレータは腐食から保護されるものの、この不動態層によって接触抵抗（燃料電池の内部抵抗）が増大することを示している。また、セパレータC'を用いて構成した単セルでは、発電に伴って顕著な電圧降下が見られる。これは、炭素材料を備えるカーボンコート層66によってセパレータが保護されていないため、セパレータが備える各層を構成する金属が溶出して、この金属のイオンが電解質膜に入り込んでプロトン伝導性を低下させることを示している。

【0091】

ここで、貴金属である銀は、腐食域にあるものの、自身が腐食される速度は非常に遅いため、セパレータC'において表面を被覆する銀によって構成される層をより厚く形成するならば、下側の卑金属の層が腐食して金属イオンが溶出するのを抑えることができる。一般に、金属メッキにおいて、メッキのミクロ欠陥は、メッキ厚が10 μ m程度で飽和状態に近づくといわれており、これ以上の厚さの銀メッキによってセパレータを被覆すれば、下側の層を構成する卑金属の溶出を防いである程度の耐食性を有するセパレータを得ることができる。これに対し本実施例のように炭素材料を有するカーボンコート層66をさらに設けることで、銀などからなる貴金属層（貴金属コート層64）をより薄くすることができると共に、たとえ貴金属（銀）自身が腐食域にあったとしても、長期的にみてもこの腐食域にある貴金属自身が腐食するおそれのない耐食性に優れたセパレータを得ることができる。

【0092】

なお、図8に示した腐食図において、炭素は水の安定化領域全体にわたって広く腐食域にあるが、炭素は酸素との親和力が非常に小さく、燃料電池の内部環境

にさらされても、腐食による劣化を考慮する必要がない。また、炭素が酸素と結びついてわずかに腐食反応が引き起こされたとしても、この反応からは二酸化炭素が生じるため、燃料電池内で悪影響を及ぼすことはなく、炭素の腐食に関しては考慮する必要はない。

【 0 0 9 3 】

(4 - 4) 耐久性の評価：

図 1 5、1 6 は、より長時間にわたってセパレータの耐久性を調べた結果を表わす。ここでは、ステンレスからなる基板部 6 0 と、この基板部 6 0 上に直接、スパッタリング（スパッタ法）によって形成した厚さ 0. 0 1 μm の銀の貴金属コート層 6 4 と、既述した実施例と同様のカーボンコート層 6 6 とを備えるセパレータ（セパレータ E）を用いた。図 1 5 は、セパレータ E を、8 0 $^{\circ}\text{C}$ 、p H 2 の硫酸中に浸漬し、図 1 2 に示したように腐食電流（黒鉛電極を対極として用いたときに検出される電流密度）を測定した結果を示す。腐食電流は、硫酸浸漬後 1 0 0 0 時間まで測定した。また、図 1 5 に示すように腐食電流を測定しながらセパレータを硫酸に浸漬する際、浸漬開始後 1 0 0 時間、2 0 0 時間、3 0 0 時間、5 0 0 時間、1 0 0 0 時間のときに、セパレータの接触抵抗を測定した結果を図 1 6 に示す。

【 0 0 9 4 】

図 1 5 に示すように、セパレータを硫酸に浸漬して 1 0 0 0 時間の間、腐食電流は負の値となり、セパレータ E は、このような条件下において良好な耐久性を示した。また、図 1 6 に示すように、接触抵抗は、セパレータ E を硫酸中に 1 0 0 0 時間浸漬することによって $8\text{ m}\Omega\text{ cm}^2$ から $10\text{ m}\Omega\text{ cm}^2$ に上昇するものの、セパレータの性能として十分に許容できる値であった。このように、銀からなる貴金属コート層 6 4 とステンレスからなる基板部 6 0 とを備えるセパレータ E は、高い耐久性を示した。なお、上記セパレータ E の貴金属コート層 6 4 を、銀に代えて金で形成したセパレータを用いて同様に耐久性を調べると、腐食電流は同様に負の値となり、接触抵抗は、 $7.5\text{ m}\Omega\text{ cm}^2$ から $8.5\text{ m}\Omega\text{ cm}^2$ に上昇するに留まり、より高い耐久性を示した（図示せず）。

【 0 0 9 5 】

(4-5) 耐熱性の評価:

図 1 7、1 8 は、より高い温度条件下におけるセパレータの耐食性を調べた結果を表わす。ここでは、上記セパレータ E と、セパレータ E の貴金属コート層 6 4 を銀に代えて金で形成したセパレータ (セパレータ F) とを用いた。すなわち、セパレータ F は、ステンレスからなる基板部 6 0 と、この基板部 6 0 上に直接、スパッタ法によって形成した厚さ $0.01 \mu\text{m}$ の金の貴金属コート層 6 4 と、カーボンコート層 6 6 とを備える。図 1 7 は、セパレータ E および F を、 90°C 、 $\text{pH} 2$ の硫酸中に浸漬し、腐食電流 (黒鉛を対極として用いたときに検出される電流密度) を測定した結果を表わす。腐食電流は、硫酸浸漬後 1 0 0 時間まで測定した。図 1 8 は、これらセパレータ E および F を硫酸に浸漬する前と、1 0 0 時間浸漬した後とにおいて、接触抵抗を測定した結果を示す。

【0096】

図 1 7 に示すように、銀で構成された貴金属コート層 6 4 を備えるセパレータ E を 90°C の硫酸に浸漬すると、腐食電流は微弱プラスからマイナスに変化した。これに対して、金で構成された貴金属コート層 6 4 を備えるセパレータ F を用いると、腐食電流は、安定して負の値であった。また、接触抵抗は、セパレータ E、F 共に、セパレータの性能として十分に許容できる値であったが、セパレータ F の方がより抵抗値が低く、抵抗値の増加量も少なかった。

【0097】

図 1 7 において、セパレータ E を用いたときに硫酸浸漬後しばらくの間は腐食電流がプラスの値を示すのは、 90°C 、 $\text{pH} 2$ の硫酸浸漬時には、部分的に微量の銀が酸化していると推定される。例えば、セパレータ E におけるカーボンコート層 6 6 の表面には、製造時の操作等に起因する相対的にバリア性の低い部位が形成されていることが考えられる。このような相対的にバリア性の低い部位は、カーボンコート層 6 6 による貴金属コート層 6 4 の保護が他の部位に比べて弱いため、より腐食を受けやすいと考えられる。したがって、浸漬後に観察される腐食電流は、このようなカーボンコート層 6 6 による貴金属コート層 6 4 の保護が弱い部位において、微量の銀が酸化 (AgO もしくは Ag_2O の形成) することによると考えられる。すなわち、貴金属である銀は、カーボンコート層 6 6 に覆

われて保護される環境下では、腐食域にあっても酸化の進行は十分に抑えられるが、90℃という高温下では酸化の速度が速まり、カーボンコート層66による保護が比較的弱い部位では、酸化反応に伴う腐食電流が観察されることになると推定される。

【0098】

腐食電流は、やがて負の値となって安定するが、このことから、カーボンコート層66による保護が弱い部位における銀が酸化すると、その後は酸化の進行が停止すると考えられる。すなわち、銀で構成した貴金属コート層64を備えるセパレータEを90℃の硫酸に浸漬すると、浸漬後しばらくは銀の酸化が緩やかに進行すると考えられるが、その後は安定した耐食性を示す。このことから、カーボンコート層66によるバリア性が比較的弱い部位の銀が酸化した後は、カーボンコート層66と、反応により形成された酸化銀により、十分な耐食性を示すと考えられる。

【0099】

このように、セパレータが優れた耐熱性（高温下での耐食性）を示すことは、これらのセパレータを用いた燃料電池の運転温度をより高く設定しても、十分な耐食性を確保可能であることを示す。

【0100】

なお、図18に示すように、セパレータEは、セパレータFに比べて、90℃、pH2の硫酸に浸漬することによる接触抵抗の増加が大きかった。その理由の一つとしては、上記したように銀が酸化した部位で、導電性が良好な銀が、導電性の低い酸化物層に置き換えられるためと推定される。

【0101】

また、90℃、pH2の硫酸中という厳しい条件下においても、カーボンコート層66においては、性能低下は認められなかった。

【0102】

（4-6）水蒸気が耐食性に与える影響の評価：

図19は、セパレータEおよびFを、100℃の水蒸気に100時間曝してその後の接触抵抗を測定した結果と、さらにその後80℃、pH2の硫酸に100

時間浸漬して、浸漬後の接触抵抗を測定した結果とを示す。各セパレータを 1 0 0℃の水蒸気に曝す処理を行なう様子の概略を、図 2 0 に表わす。水蒸気に曝す処理は、恒温器中において水槽中の水を沸騰（1 0 0℃）させ、金網に載せたセパレータを、この水槽上に配設することにより行なった。

【 0 1 0 3 】

燃料電池の内部では、電気化学反応に伴ってカソード側で生成水が発生する。また、アノード側に対しては、通常は加湿された燃料ガスが供給される。このように燃料電池の内部は、水蒸気圧が高いという極めて酸化しやすい条件となっている。上記したように 1 0 0℃の水蒸気に 1 0 0 時間曝すという処理は、このような燃料電池内部の水蒸気の状態と比べても、さらに厳しい（酸化しやすい環境に曝す）処理であるといえる。このような厳しい条件下での性能を調べることで、燃料電池用ガスセパレータとしての、より長期にわたる信頼性の評価を図った。

【 0 1 0 4 】

図 1 9 に示すように、高温の水蒸気に曝した後も、さらにその後硫酸に浸漬した後も、金で構成した貴金属コート層 6 4 を備えるセパレータ F の接触抵抗は、安定して低い値となった。これに対して、銀で構成された貴金属コート層 6 4 を備えるセパレータ E では、高温の水蒸気に曝すことによって、セパレータ F に比べて接触抵抗の上昇が大きくなった。

【 0 1 0 5 】

ここで、セパレータ E において接触抵抗の増加が見られたのは、1 0 0℃の水蒸気に曝すという、通常の燃料電池の内部環境に比べてもさらに厳しい酸化条件下では、貴金属である銀であってもわずかに酸化が進行して、導電性の劣る酸化物が生成される場合があるためと推定される。これに対して、金で構成した貴金属コート層 6 4 を備えるセパレータ F は、上記したいかなる条件下でも安定した高い耐腐食性（耐酸化性）を示し、燃料電池の運転温度をより高く設定する場合、あるいは燃料電池をより長期にわたって使用する場合にも、極めて高い耐食性を維持し、燃料電池の性能低下を防止することができると考えられる。

【 0 1 0 6 】

(5) セパレータ 30 に適用可能な金属種：

以上説明したように、セパレータ 30 は、貴金属コート層 64 を構成する貴金属の種類およびその厚さを適宜選択し、図 7 ～ 図 10 にその腐食図を示した各金属の性質を考慮することによって、下地コート層 62 を構成する卑金属や基板部 60 を構成する卑金属として種々の組み合わせを選択し、耐食性および導電性に優れたセパレータを実現することができる。以下に、既述した各金属の性質に基づいて、セパレータ 30 を形成するために種々の金属を適用する構成について説明する。

【0107】

本実施例のセパレータ 30 は、貴金属によって形成される貴金属コート層 64 を、炭素材料を備えるカーボンコート層 66 によって被覆することで、優れた耐食性および導電性を実現することを特徴としている。導電性（不動態形成）の問題に関しては、基本的には、貴金属からなる貴金属コート層 64 を設けることによって十分に防止することができる（不動態域にある貴金属であっても、カーボンコート層によって保護される環境下では、不動態の形成が問題となるおそれはない）。また、腐食の問題に関しては、貴金属コート層 64 を形成する貴金属については、十分に腐食の進行を抑えることができる（既述したように、腐食域にある銀であっても、カーボンコート層 66 を設けることで十分に腐食を抑えることができる）。貴金属コート層 64 よりも下の層を構成する卑金属については、腐食図に示した性質に基づいて選択することで、十分な耐食性を実現することができる。なお、貴金属コート層 64 を構成する貴金属を選択する際には、より安価な銀を用いることで、貴金属コート層 64 をより厚く形成してもセパレータ全体のコストをより削減することが可能となる。

【0108】

貴金属コート層 64 よりも下の層を構成する金属に関しては、例えば、下地コート層 62 を形成する卑金属としてより貴なものを選択すれば、これを覆う貴金属コート層 64 の厚みをより薄くしてもセパレータ全体で十分な耐食性を実現することが可能となり、また、同じ厚さの貴金属コート層 64 を備える場合にはより耐食性を向上させることができる。例えば、図 11 において、セパレータ A と

セパレータ B とは同様の貴金属コート層 6 4 を有しているが、下地コート層 6 2 を構成する金属としてより貴である銅を用いたセパレータ B の方が、接触抵抗の値も小さく腐食電流も小さい。セパレータ 3 0 の材料コストにおいては、貴金属材料のコストが大きくなるため、貴金属層を薄くして下地コート層 6 2 により貴な卑金属を用いることによって、効果的にコストを削減することが可能となる。なお、異種の金属が共存する場合には、それらのイオン化傾向が大きいほど、両者の間でより卑である金属の腐食が進行してしまうおそれがあるが、下地コート層 6 2 として銅のようにより貴な卑金属を選択することは、貴金属コート層 6 4 を構成する貴金属との間のイオン化傾向の差がより小さくなるため、下地コート層 6 2 の腐食を抑える効果をさらに増すことになり望ましい。もとより、下地コート層 6 2 を構成する金属としてより卑である金属を選択する場合にも、貴金属コート層 6 4 をより厚く形成することによって、貴金属コート層 6 4 におけるメッキのミクロ欠陥を削減し、セパレータの耐食性を確保する構成も可能である。

【 0 1 0 9 】

また、上記した下地コート層 6 2 を構成する卑金属の説明では、この卑金属のイオン化傾向、すなわち腐食しやすさを問題にしたが、下地コート層 6 2 を構成する卑金属として、不動態域にある金属を用いることによって、セパレータの耐食性を向上させることが可能である。例えば、既述したようにスズは、燃料電池領域では不動態域にあるため、腐食が進行して金属イオンが溶出することがない。また、接触抵抗を増大させる原因となるスズ表面の不動態層は、その表面に貴金属メッキを施して貴金属コート層を形成する際に取り除かれ、貴金属コート層 6 4 が形成された後はこの貴金属コート層 6 4 によってスズ表面が保護されて、再び形成されることがない。したがって、スズのような不動態域にある卑金属の下地コート層 6 2 を形成することによって、優れた耐食性を有するセパレータを得ることができる。この場合には、下地コート層 6 2 の耐食性が充分であるため、貴金属からなる貴金属コート層 6 4 をより薄くすることが可能となる。なお、この下地コート層 6 2 の厚さは、これに被覆される基板部 6 0 の腐食を十分に防止できる厚さであればよい。

【 0 1 1 0 】

なお、上記した説明では、セパレータにおいて下地コート層 6 2 を設けることとしたが、基板部 6 0 上に直接貴金属メッキを施すことが可能であって、この貴金属メッキからなる貴金属コート層 6 4 を十分な厚さに形成して、メッキのミクロ欠陥を削減し基板部の溶出を防ぐことができれば、下地コート層 6 2 は設けないこととしてもよい。また、これら各層を形成する金属の種類および各層の厚みは、セパレータに要求される耐食性の程度や許容できるコストに応じて、適宜選択すればよい。

【 0 1 1 1 】

基板部 6 0 を構成する金属としては、十分な強度と導電性と成型容易性を有するものの中から、コスト等を考慮して適宜選択すればよいが、ステンレスを用いることにより、セパレータ全体の耐食性をより高めることが可能となる。なお、このように基板部 6 0 をステンレスで構成して高い耐食性を確保するためには、用いるステンレスとしては、オーステナイト系ステンレスを用いることが望ましい。

【 0 1 1 2 】

なお、既述した実施例では、セパレータ全体に貴金属コート層 6 4 やカーボンコート層 6 6 を設けることとしたが、必要な耐食性および導電性が確保できるならば、これらすべての層をセパレータ全体に設ける必要はない。セパレータにおいては、燃料電池内に組み込んだときに隣接する部材と接触する領域において十分な導電性が確保されており、腐食により溶出した金属イオンが固体高分子電解質膜中に入り込むのを防止できればよい。したがって、少なくとも上記隣接する部材と接触する領域において不動態の形成が防止できればよく、この領域に加えてさらにガス流路を形成する領域において腐食が防止できればよい。そのため、例えばセパレータ全体を十分な厚さのスズメッキからなる下地コート層 6 2 で覆い、上記隣接する部材と接触する領域にのみさらに貴金属からなる貴金属コート層 6 4 を設け、これらの領域全体をカーボンコート層 6 6 で覆う構成とすることができる。このような構成とすれば、ガス流路を形成する領域は、スズメッキ表面に不動態が形成されるものの充分に腐食を防止することができると共に、上記隣接する部材と接触する領域では、スズメッキを貴金属層が覆うことで十分な導

電性を維持することができる。また、表面に不動態を形成したステンレスはスズと同様に腐食に対する耐性が優れているため、ステンレスからなる基板部 6 0 において、上記隣接する部材と接触する領域に貴金属からなる貴金属コート層 6 4 を設け、この貴金属コート層 6 4 と、流路を形成する領域とを被覆するようにカーボンコート層 6 6 を設けることとしても、耐食性と導電性に優れたセパレータを得ることができる。

【 0 1 1 3 】

また、燃料電池用ガスセパレータは、既述したようにその両面で燃料ガスおよび酸化ガスの流路を形成するほかに、一方の面において、燃料電池の運転温度を調節するための冷却水を通過させる流路を形成する場合がある。このようなセパレータでは、冷却水の流路を形成する側は、必ずしも上記実施例と同様の構成にする必要はない。すなわち、冷却水を通過させる側は、単セル内部のように pH 2 といった厳しい酸性条件下にはならず、冷却水の性質に従ってほぼ中性であるため、腐食域にある卑金属であってもはるかに腐食が進行しにくい。また、固体高分子電解質膜に直接連通していないため、溶出した金属イオンが直ちに燃料電池の性能に影響することもない。したがって、冷却水の流路を形成する側は、十分な導電性を維持することができ、燃料電池を構成する部材としての十分な耐久性を有していればよく、例えば、下地コート層 6 2 のみ、あるいは、下地コート層 6 2 および貴金属コート層 6 4 を設けることとすることができる。

【 0 1 1 4 】

燃料電池内で、既述したセパレータ 3 0 が冷却水流路を形成する様子を、図 2 1 に示す。図 2 1 に示した燃料電池では、冷却水流路 2 6 P を形成するためにセパレータ 3 0 を 2 枚重ねて用いており、ここでは、冷却水流路 2 6 P は、隣り合う所定の単セル間に形成される。冷却水流路 2 6 P を形成する 2 枚のセパレータのそれぞれは、その一方の面において、隣接する単セルが備えるアノード 2 2 あるいはカソード 2 3 との間で、燃料ガス流路 2 4 P あるいは酸化ガス流路 2 5 P を形成し、他方の面において、もう 1 枚のセパレータ 3 0 と共に、冷却水流路 2 6 P を形成する。それぞれのセパレータ 3 0 において、冷却水流路 2 6 P を形成する側の面は、上記したように、下地コート層 6 2 のみ、あるいは、下地コート

層 6 2 および貴金属コート層 6 4 を設けることとしてもよい。なお、図 2 1 に示したセパレータ 3 0 において、冷却水流路 2 6 P を形成する側の最も凸である面、すなわち隣り合うセパレータ 3 0 と接する面は、燃料電池が発電を行なう際に電子の流れを確保する必要があるため、この 2 枚のセパレータ 3 0 が接する部位は、電子伝導性を阻害するシール部材等を介在させることなく充分に密着されている。なお、隣接するセパレータ 3 0 間には、その外枠の領域において所定のシール部材が設けられており、冷却水流路 2 6 から外部へ冷却水が漏れるのを防止している。また、冷却水流路 2 6 P 内を通過する冷却水に電気が漏れることに起因する電気の損失を防止するために、冷却水流路 2 6 P 内を通過させる冷却水は、溶存イオン濃度が低い液体を用いることが望ましい。

【 0 1 1 5 】

(6) 第 2 実施例のセパレータ 1 3 0 の構成および作用・効果：

上記したセパレータでは、卑金属からなる下地コート層 6 2 上に、貴金属からなる貴金属コート層 6 4 を設けることによって、上記下地コート層 6 2 表面で不動態が形成されるのを抑え、セパレータの導電性を確保していたが、貴金属層を設ける以外の構成によって導電性を確保することも可能である。以下に、第 2 実施例として、既述したセパレータ 3 0 と同様の構成を有し、貴金属からなる貴金属コート層 6 4 の代わりに、導電性（電子伝導性）粒子を分散させた卑金属からなる卑金属コート層 1 6 4 を有するセパレータ 1 3 0 の構成を説明する。

【 0 1 1 6 】

図 2 2 は、第 2 実施例のセパレータ 1 3 0 の構成を表わす説明図である。セパレータ 1 3 0 は、図 1 (B) に示した第 1 実施例のセパレータ 3 0 と同様の構成を有して、同様の燃料電池を構成するものであり、貴金属コート層 6 4 に代えて卑金属コート層 1 6 4 を備えている。この卑金属コート層 1 6 4 の構成を図 2 3 に示す。卑金属コート層 1 6 4 は、卑金属であるスズによって形成され、その内部に分散して導電性（電子伝導性）粒子である黒鉛粒子を保持している。卑金属コート層 1 6 4 が備える黒鉛粒子は、卑金属コート層 1 6 4 の表面（カーボンコート層 6 6 と接触する側の表面）から卑金属コート層 1 6 4 の内部にわたって充分な量が分散している。スズは、図 9 (E) に示したように、燃料電池領域を含

む水の安定化領域内で広く不動態域となっているため、上記卑金属コート層 1 6 4 の表面には、スズ酸化物からなる不動態層が形成されるが、この不動態層においても充分量の黒鉛粒子が分散保持されている。なお、セパレータ 1 3 0 において、卑金属コート層 1 6 4 以外の基板部 6 0、下地コート層 6 2、カーボンコート層 6 6 は、セパレータ 3 0 と同様の構成を有している。

【 0 1 1 7 】

また、このようなセパレータ 1 3 0 を製造するには、図 5 に示したセパレータ 3 0 の製造工程において、貴金属コート層 6 4 を形成するステップ S 1 2 0 に代えて、上記卑金属コート層 1 6 4 を形成する工程を行なえばよい。卑金属コート層 1 6 4 を形成するには、例えば、卑金属コート層 1 6 4 を形成するために、下地コート層 6 2 を形成した基板部 6 0 にメッキ処理を施す際に、メッキ浴中に所定量の黒鉛粒子を混合しておき、黒鉛粒子を内部に分散保持したスズメッキ層を形成させるという方法を採用することができる。あるいは、溶融させたスズに所定量の黒鉛粒子を混合し、スプレーによる吹きつけで卑金属コート層 1 6 4 を形成することとしてもよい。

【 0 1 1 8 】

以上のように構成された第 2 実施例のセパレータ 1 3 0 によれば、導電性と耐食性に優れたセパレータを得ることができると共に、セパレータに貴金属を用いる必要もない。また、このセパレータ 1 3 0 を用いて、第 1 実施例と同様の燃料電池を構成することにより、セパレータが腐食したり酸化したりすることに起因して燃料電池の性能が低下するのを抑え、燃料電池の耐久性を向上させることができる。

【 0 1 1 9 】

すなわち、セパレータ 1 3 0 の卑金属コート層 1 6 4 を形成する金属は卑金属のスズであるため、カーボンコート層 6 6 でさらに被覆してもその表面には酸化によって不動態層が形成されてしまうが、卑金属コート層 1 6 4 が備える黒鉛粒子によって、セパレータ 1 3 0 全体の導電性を確保することができる。ここで、卑金属コート層 1 6 4 を形成するスズの酸化物は、所定の導電性を備えて半導体的な性質を有するが、セパレータに求められる導電性としては不十分であり、卑

金属コート層がスズの不動態層によって被覆されてしまうと、このセパレータの抵抗は許容できない程度に上昇してしまう。本実施例では、黒鉛粒子を備えることで、卑金属コート層 1 6 4 がカーボンコート層 6 6 と接触する領域においてこのような不動態層が形成されても、この不動態層においては、黒鉛粒子によって上記接触する領域での導電性が確保され、セパレータ 1 3 0 全体の導電性も十分に保持できる。

【 0 1 2 0 】

また、既述したように、スズは不動態域にあるため、腐食が進行する状態がエネルギー的に安定な状態とはならず、さらに、スズ表面が酸化して形成された不動態層は、スズ層の内部を保護するため、スズを備える卑金属コート層 1 6 4 をカーボンコート層 6 6 で被覆する本実施例のセパレータ 1 3 0 は、腐食に対する十分な耐性を有している。

【 0 1 2 1 】

なお、上記第 2 実施例では、卑金属コート層 1 6 4 をスズによって形成したが、異なる金属によって形成してもよい。例えば、スズとビスマス、あるいはスズとインジウムなどのスズ合金や、ニッケル、銅などによって卑金属コート層 1 6 4 を形成することとしても良い。本実施例の卑金属コート層 1 6 4 を形成する金属としては、燃料電池領域において不動態域にあり、表面に不動態層を形成することによって腐食に対する耐性が充分となる金属であれば、同様の効果を得ることができる。また、卑金属コート層 1 6 4 は黒鉛粒子を備えることとしたが、このような粒子状の炭素材料の他、異なる種類の導電性粒子を備えて導電性を確保することとしてもよい。例えば、貴金属粒子や導電性セラミックの粒子を、上記黒鉛粒子の代わりに用いることとしてもよい。さらに、本実施例のセパレータ 1 3 0 が備えるカーボンコート層 6 6、下地コート層 6 2、基板部 6 0 を構成する材料は、第 1 実施例のセパレータ 3 0 と同様に、種々のものを選択可能である。

【 0 1 2 2 】

既述したように、第 2 実施例の卑金属コート層 1 6 4 では、不動態層が腐食に対する耐性を実現すると共に、不動態層が備える黒鉛粒子が導電性を確保している。したがって、上記実施例では卑金属コート層 1 6 4 全体に黒鉛粒子が分散し

て備えられることとしたが、黒鉛粒子は、少なくとも卑金属コート層 1 6 4 表面の不動態層において導電性を確保できるように備えられていればよい。卑金属コート層 1 6 4 上に形成された不動態層の表面と、不動態層によって覆われた卑金属コート層 1 6 4 内部とが、充分量の黒鉛粒子によって良好な導通状態に保たれることによって、セパレータ全体の抵抗を抑えることができる。卑金属コート層 1 6 4 が備える黒鉛粒子量は、セパレータ 1 3 0 に求められる導電性の程度や、黒鉛粒子を備える卑金属コート層 1 6 4 の形成の容易さに応じて適宜決定すればよい。

【 0 1 2 3 】

また、上記第 2 実施例では、卑金属コート層 1 6 4 と基板部 6 0 との間に下地コート層 6 2 を設けたが、基板部 6 0 の不動態形成速度が十分に遅ければ、あるいは、基板部 6 0 の不動態形成を考慮する必要がないならば、基板部 6 0 上に直接卑金属コート層 1 6 4 を設けることとしてもよい。この場合には、卑金属コート層 1 6 4 を介して基板部 6 0 の腐食が進行するのを防ぐために、卑金属コート層 1 6 4 を十分に厚く（例えば $10\mu\text{m}$ 以上）形成することが望ましい。また、上記第 2 実施例では、カーボンコート層 6 6 と卑金属コート層 1 6 4 と下地コート層 6 2 とをセパレータ表面全体に形成し、導電性と耐食性とを確保したが、このように各層を重ねた構造は、燃料電池内で隣接する部材（ガス拡散電極）と接触するセパレータの接触面のうち、接触抵抗に関わる面に対応する領域のみに設けることとしてもよい。このような構成としても、他の領域において異なる方法で十分な耐食性が確保できれば、セパレータ全体で、所望の耐食性と導電性を実現することができる。

【 0 1 2 4 】

なお、上記第 1 および第 2 実施例において、セパレータ 3 0 あるいはセパレータ 1 3 0 の形状を図 1，図 2，図 3，図 2 2 等に示したが、これらの形状に限るものではなく、本発明のセパレータの構成は異なる形状のセパレータに適用することも可能である。単セル内に形成される（電気化学反応に供する流体の）流路を形成するセパレータに対して本発明を適用することにより、既述した実施例と同様の効果を得ることができる。

【 0 1 2 5 】

また、既述した実施例では、固体高分子型燃料電池を例示したが、本発明の燃料電池用ガスセパレータは、異なる種類の燃料電池においても用いることが可能である。燃料電池の中には、固体高分子型燃料電池よりも高温で動作するものや、電解質層が強い酸性やアルカリ性を示すもの、あるいは、アルコールなどの炭化水素系の燃料を直接電気化学反応に供するものなどがある。このようにそれぞれの燃料電池によって要求される耐熱性や耐酸性、耐アルカリ性や耐薬品性（上記燃料として供給される物質に対する耐性）などが充分となるように、本発明を適用するセパレータにおいて、既述した貴金属コート層やカーボンコート層、あるいは下地コート層や卑金属コート層を構成する材料を選択すればよい。

【 0 1 2 6 】

(7) セパレータの他の製造方法：

既述した第 1 および第 2 実施例では、セパレータ 3 0 あるいはセパレータ 1 3 0 を製造する際に、最初に基板部 6 0 を所定の形状に成形した上で、貴金属コート層 6 4 （あるいは卑金属コート層 1 6 4 ）およびカーボンコート層（下地コート層を備えるセパレータを製造する場合には下地コート層も）を形成したが、貴金属コート層やカーボンコート層を形成する工程は、基板部 6 0 の成形に先立って行なうこととしても良い。このような構成を第 3 実施例として以下に説明する。なお、この第 3 実施例では、セパレータの基材となる金属部材として一つの金属薄板を用い、複数のセパレータを製造する工程について説明する。

【 0 1 2 7 】

図 2 4 は、第 3 実施例のセパレータの製造方法を表わす工程図である。また、図 2 5 ～図 2 8 は、図 2 4 に示したセパレータの製造方法の各工程の様子を表わす説明図である。なお、ここでは、第 1 実施例のセパレータと同様のセパレータ、すなわち、下地コート層 6 2 と貴金属コート層 6 4 とカーボンコート層 6 6 とを備えるセパレータ 3 0 を製造する工程について説明することとする。第 3 実施例のセパレータ 3 0 の製造方法では、まず、ロール状の金属薄板 7 0 を用意する（ステップ S 2 0 0）。このロール状の金属薄板 7 0 は、セパレータ 3 0 の基板部 6 0 を成すものであり、ここでは、ステンレスからなるロール状薄板を用意し

た。上記したように、本実施例のセパレータの製造工程は一つの金属薄板から複数のセパレータを製造するものであり、このロール状薄板は、製造するセパレータ 3 0 の一辺に対応する幅を有し、所望の枚数のセパレータ 3 0 を製造可能な十分な長さを有するものとする。

【 0 1 2 8 】

次に、このロール状の金属薄板 7 0 に、所定の形状の穴をあける穴あけ工程を行なう（ステップ S 2 1 0）。この工程で設ける穴は、セパレータ 3 0 を含む部材を積層して燃料電池を形成したときに燃料電池内で流体の流路を形成するものであり、図 3 に示したセパレータでは、燃料ガス孔 5 0、5 1 および酸化ガス孔 5 2、5 3 に相当する。もとより、この穴あけ工程では、燃料ガスおよび酸化ガスの流路を形成する穴の他に、燃料電池スタックの積層方向に貫通して形成される冷却水の流路を形成するための穴を同時に形成することとしても良く、このステップ S 2 1 0 は、セパレータ 3 0 に設ける穴構造を形成する工程として行なわれる。

【 0 1 2 9 】

図 2 5（A）に、ステップ S 2 1 0 の穴あけ工程の様子を示す。本実施例では、この穴あけ工程の他、後述する他の工程においても、ロール状の金属薄板 7 0 に所定の処理を施すときには、ロール状の金属薄板 7 0 を端部から順次ローラを用いて送り出し、所定の装置に供して穴あけなどの処理を施し、処理の終わった部分から順次巻き取り用のローラに巻き取るという動作を行なう。ステップ S 2 1 0 では、ローラ（図 2 5 では中間ローラ 8 3 と記載）を用いてロール状の金属薄板 7 0 を、上下に金型 8 1、8 2 を備える穴あけプレス装置 8 0 へと導き、穴あけの処理を行なって、所定の穴のあいた金属薄板 7 2 と成し、この金属薄板 7 2 を巻き取りローラ 8 4 に巻き取る。このようにしてできあがった金属薄板 7 2 は、後述するステップ S 2 4 0 において金属薄板を分割して複数のセパレータ 3 0 としたときには、それぞれのセパレータの所望の位置に所望の穴が配置するように、複数の穴が形成されている。図 2 5（B）は、このような穴が形成されたロール状（ここでは帯状）の金属薄板 7 2 の様子を表わす説明図である。図 2 5（B）では、最終的に個々のセパレータに分割される位置を点線で表わし、図 3

に示した燃料ガス孔 5 0, 5 1 および酸化ガス孔 5 2, 5 3 と同様の穴が形成された様子を模式的に表わしているが、所望のセパレータ形状に応じて、所定の位置に所定の大きさの穴をあけることとすればよい。

【 0 1 3 0 】

次に、ステップ S 2 1 0 で穴あけ処理を施した金属薄板 7 2 に対してメッキ処理を施すメッキ工程を行なう（ステップ S 2 2 0）。本実施例のステップ S 2 1 0 では、下地コート層 6 2 となる銅メッキ層と、貴金属コート層 6 4 となる銀メッキ層とを、この順で金属薄板 7 2 上に形成する。図 2 6 に、メッキ工程の様子を示す。図 2 6 では、メッキ処理として電解メッキを行なう際の様子を示す。もとより、無電解メッキや蒸着、スパッタリングなど他の方法によって下地コート層 6 2 および貴金属コート層 6 4 を形成することとしても構わない。図 2 6 に示したメッキ処理では、ローラ（図 2 6 では中間ローラ 8 3 および槽内ローラ 8 6 と記載）を用いて、所定のメッキ液（最初は銅メッキのためのメッキ液）を備えるメッキ槽 8 5 に、金属薄板 7 2 を端部から順に導いて、メッキ処理に供する。メッキ層を形成された金属薄板 7 4 は、乾燥装置 8 8 を経由して、巻き取りローラ 8 4 に巻き取られる。

【 0 1 3 1 】

電気メッキの工程では、銅あるいは銀などのメッキ層を構成すべき金属材料を含有するめっき液中で、金属薄板 7 2 が一極に、ステンレスなどの不溶性電極（図 2 6 における電極 8 7）が＋極になるように、両者を所定の電源に接続して数ボルトの直流電圧をかけることによって、金属薄板 7 2 の表面に所定の金属が析出してメッキ層が形成される。なお、図 2 6 では、電極を接続する配線や電源などの記載は省略している。また、図 2 6 に示したメッキ工程では、金属薄板 7 2 の両側に上記＋極となる電極 8 7 を配設しており、金属薄板 7 2 の両面に同時にメッキ層を形成させる構成となっている。なお、メッキ槽 8 5 中でメッキ処理が施された金属薄板 7 4 は、乾燥装置 8 8 を経由するが、この乾燥装置 8 8 は、メッキ処理後の金属薄板 7 4 に付着しているめっき液を、エアブローなどによって取り除く装置である。ステップ S 2 2 0 では、図 2 6 に示した処理によって銅メッキを行なうと共に、引き続き同様の銀メッキ処理を行ない、銅メッキ層および

銀メッキ層を備える金属薄板 7 6 を形成する。

【 0 1 3 2 】

メッキ工程を行なうと、次に、メッキ処理を施した金属薄板 7 6 上に、カーボンコート層を形成する処理を行なう（ステップ S 2 3 0）。図 2 7 に、カーボンコート層を形成する工程としてのロールコートの様子を示す。この処理では、上記銅メッキ層および銀メッキ層を形成した金属薄板 7 6 を、塗工装置 9 0 に、ローラを用いて端部から順に導く。塗工装置 9 0 で黒鉛塗料を塗布された金属薄板 7 6 は、乾燥装置 8 8 を経由し、カーボンコート層を形成した金属薄板 7 8 として巻き取りローラ 8 4 に巻き取られる。ここで、塗工装置 9 0 は、ドクターブレード 9 1 と塗工ローラ 9 3 とを備えており、既述した炭素材料およびバインダと所定の溶媒（例えば、キシロール、トリオール、イソプロピルアルコールなどの溶媒あるいは水など）とを混合してペースト状にした黒鉛塗料 9 2 を、ドクターブレード 9 1 を用いて金属薄板 7 6 上に供給し、塗工ローラ 9 3 の間を通過させることで、金属薄板 7 6 上に均一な厚みで黒鉛塗料を塗布する。黒鉛塗料 9 2 を塗布された金属薄板 7 6 が乾燥装置 8 8 を経由すると、黒鉛塗料 9 2 中の上記溶媒が除去され、カーボンコート層を形成した金属薄板 7 8 となる。カーボンコート層は、既述したように浸漬やスプレーによっても形成することができるが、図 2 7 のような塗工装置 9 0 を用いることで、ロール状の金属薄板上に均一な厚みのカーボンコート層を容易に形成することができる。

【 0 1 3 3 】

なお、図 2 7 では、金属薄板 7 6 の一方の面上にカーボンコート層を形成する工程を示したが、図 1 に示したセパレータ 3 0 のように、その両面にカーボンコート層 6 6 を備えるセパレータを製造する場合には、図 2 7 の工程を 2 度繰り返すことで金属薄板 7 6 の両面に黒鉛塗料 9 2 を塗布し、両面にカーボンコート層を備える金属薄板 7 8 を形成する。

【 0 1 3 4 】

カーボンコート層を形成すると、次に、所定の凹凸形状を有するように金属薄板 7 8 を成形すると共に、金属薄板を個々のセパレータに分離する処理を行ない（ステップ S 2 4 0）、セパレータ 3 0 を完成する。図 2 8 に、金属薄板 7 8 の

成形と分離を行なう工程であるプレス・カット工程の様子を示す。この処理では、上記カーボンコート層を形成した金属薄板 7 8 を、プレス・カット装置 9 5 に、ローラ（図 2 8 では中間ローラ 8 3 と記載）を用いて端部から順に導く。プレス・カット装置 9 5 は、金型 9 6、9 7 を備えており、これらの金型を用いて金属薄板 7 8 をプレスすることで、金属薄板 7 8 に所定の凹凸形状を形成すると共に、金属薄板 7 8 を所定の位置で切断して、金属薄板 7 8 から所定の凹凸形状を有するセパレータ 3 0 を分離する。

【0 1 3 5】

なお、本実施例のセパレータ 3 0 の製造方法では、ステップ S 2 4 0 の工程において、図 2 8 に示したように、金型 9 6、9 7 を備える装置を用いたプレス成形によって所定の凹凸形状を形成したが、図 2 8 の上側の金型 9 6 に代えてローラ状の金型を用い、ロール成形によって上記凹凸形状を形成することとしても良い。また、上記実施例では、プレス・カット装置 9 5 を用いて、金属薄板の成形と分離とを同時に行なうこととしたが、成形と分離とは別々に行なうこととしても良い。

【0 1 3 6】

以上のように構成された本実施例のセパレータの製造方法によれば、凹凸形状を形成するための成形の工程に先立って、メッキによる金属層の形成やカーボンコート層の形成といった表面処理を施すため、これらの表面処理は平板状の金属薄板に対して行なえば良く、表面処理のための操作がより容易となる。このとき、個々のセパレータに対応する金属薄板を用いることとし、個々のセパレータに対して表面処理を行なった後に成形を行なう場合にも、平板状の金属薄板に対して表面処理を行なうことでこの処理のための操作が容易になるという所定の効果は得られるが、上記実施例のように、ロール状の金属薄板を用いて端部から連続的に表面処理を施して、最終的に個々のセパレータとして分離することによって、セパレータの生産性をさらに向上させることができる。

【0 1 3 7】

また、カーボンコート層の形成を、平板状の金属薄板に対して行なうことができるので、カーボンコート層を形成するために、図 2 7 に示したようにロールコ

ートによって黒鉛塗料を塗布する方法を用いることができる。これにより、カーボンコート層 6 6 の厚さをより均一にすることが可能となる。したがって、このようにして製造したセパレータを用いた燃料電池では、カーボンコート層に起因する内部抵抗をより均一化することができ、燃料電池の発電効率を高めることができる。さらに、カーボンコート層を形成した後でプレス工程を行なうことで、カーボンコート層と、これの下側に位置する金属層との間の密着性が向上するという効果が得られる。カーボンコート層の密着性が向上することによって、燃料電池の内部抵抗をより抑えることができる。

【 0 1 3 8 】

なお、上記第 3 実施例では、第 1 実施例と同様のセパレータ 3 0 を製造する方法を示したが、凹凸形状の成形に先立って金属薄板上に金属層やカーボンコート層を形成する構成は、金属製の基板部上に基板部とは異なる材料からなる層を備え、所定の凹凸形状を有する種々のセパレータを製造する際に適用することができる。例えば、上記セパレータ 3 0 では、基板部 6 0 となる金属薄板を構成する材料や、下地コート層 6 2 および貴金属コート層 6 4 を構成する材料等は、既述したように種々の材料の中から適宜選択することが可能である。セパレータにおいて下地コート層 6 2 を設けない構成とする場合には、図 2 4 に示したステップ S 2 2 0 で、図 2 6 に示したメッキ工程を 1 回行ない、第 1 コート層を成す貴金属層を金属薄板上に直接形成することとすればよい。

【 0 1 3 9 】

また、第 2 実施例のセパレータ 1 3 0 を製造する際に上記製造方法を適用する場合には、卑金属コート層 1 6 4 は、既述したように、黒鉛粒子を混合したメッキ浴を用いるメッキ処理の他、溶融させたスズに黒鉛粒子を混合したものをスプレーで吹きつけるなどの方法によっても形成することができる。このような場合にも、上記実施例のようにロール状の金属薄板の端部から順に吹きつけの処理などを行なうことにより、卑金属コート層 1 6 4 を効率よく形成することができる。

【 0 1 4 0 】

また、既述したように、セパレータの一方の面には冷却水の流路を形成する場合などは、セパレータの上記一方の面には下地コート層 6 2 だけ、あるいは下地コート層 6 2 および貴金属コート層 6 4（または卑金属コート層 1 6 4）だけを設けることとし、セパレータの他方の面だけにカーボンコート層を設けることとしても良い。このような場合には、図 2 4 のステップ S 2 3 0 において、図 2 7 に示した工程を 1 度だけ行ない、金属薄板 7 6 の一面だけにカーボンコート層を形成することとすればよい。

【 0 1 4 1 】

既述した実施例では、セパレータ基板部 6 0 を構成する金属薄板の外周部近傍に所定の穴構造（燃料ガス孔 5 0， 5 1 や酸化ガス孔 5 2， 5 3 など）を設け、セパレータを積層したときには、これらの穴構造によって、燃料電池の積層方向に形成される流体流路を形成することとした。このような構成に代えて、例えば、その表面上で単セル内ガス流路を形成するための構造（すなわち、図 3 に示したセパレータにおいてリブ 5 4， 5 5 が形成される領域に対応する内側の部材）は、上記のような表面処理を施した金属薄板によって形成し、上記積層方向に形成される流体流路を形成するための構造（すなわち、図 3 に示したセパレータにおいて燃料ガス孔 5 0， 5 1、酸化ガス孔 5 2， 5 3 が形成された外周部の領域に対応する外枠の部材）は、上記金属薄板とは別体の部材によって形成し、上記内側の部材と外枠の部材とを組み合わせることによってセパレータを製造することとしても良い。このような場合にも、上記単セル内ガス流路を形成するための構造（内側の部材）を製造する際に、凹凸形状の成形に先立ってメッキや塗布などの表面処理を施すことにより、さらに、ロール状の金属薄板から複数のセパレータを製造することにより、既述した効果を得ることができる。なお、金属薄板から上記内側の部材を形成する場合には、図 2 4 に示した製造工程で、ステップ S 2 1 0 の穴あけ工程は省略することとすればよい。

【 0 1 4 2 】

上記のように、金属薄板に所定の処理を施して成る内側の部材と外枠の部材とを組み合わせるセパレータを製造する場合には、外枠の部材は、樹脂、ゴム、セラミックなどの絶縁性材料によって構成することとすれば良く、このような構成

とすることで、燃料電池スタックの外周部における絶縁性を外枠の部材によって確保することができる。なお、流体流路を形成する穴構造を有する領域を含む全体を、金属薄板を基板部として形成する場合には、セパレータの外周部の内側（例えば、上記穴構造が形成される領域）に絶縁性のシール材を配設することによって、燃料電池スタックの外周部における絶縁性を確保すればよい。

【 0 1 4 3 】

また、上記第 3 実施例では、金属の層（下地コート層 6 2 や貴金属コート層 6 4 あるいは卑金属コート層 1 6 4）とカーボンコート層 6 6 を形成した後で、所定の凹凸形状を形成する処理を行なったため、生産性を向上させる効果をより充分に得ることができるが、凹凸形状を形成する処理（プレス成形など）は、いずれの段階で行なっても良く、下地コート層や貴金属コート層を形成した後に凹凸形状を形成する処理を行ない、その後カーボンコート層を形成することとしても、既述したセパレータと同様の構成のセパレータを製造することができる。

【 0 1 4 4 】

以上本発明の実施例について説明したが、本発明はこうした実施例に何等限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲内において種々なる状態で実施し得ることは勿論である。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

本発明の好適な一実施例であるセパレータ 3 0 の構成を表す説明図である。

【図 2】

単セル 2 8 の構成を表わす断面模式図である。

【図 3】

単セル 2 8 の構成を表わす分解斜視図である。

【図 4】

単セル 2 8 を積層したスタック構造 1 4 の外観を表わす斜視図である。

【図 5】

セパレータ 3 0 の製造工程を表わす説明図である

【図 6】

カーボンコート層 6 6 の構成を模式的に表わす説明図である

【図 7】

種々の金属の腐食に関わる性質を表わす説明図である。

【図 8】

種々の金属の腐食に関わる性質を表わす説明図である。

【図 9】

種々の金属の腐食に関わる性質を表わす説明図である。

【図 1 0】

種々の金属の腐食に関わる性質を表わす説明図である。

【図 1 1】

種々の金属を選択して構成したセパレータの性能を調べた結果を表わす説明図である。

【図 1 2】

腐食電流を測定する様子を表わす説明図である。

【図 1 3】

種々の金属を選択して構成したセパレータについて、イオン溶出試験を行なった結果を表わす説明図である。

【図 1 4】

各セパレータを用いて構成した燃料電池の性能を調べた結果を表わす説明図である。

【図 1 5】

セパレータの耐久性を腐食電流で評価した結果を表わす説明図である。

【図 1 6】

セパレータの耐久性を接触抵抗で評価した結果を表わす説明図である。

【図 1 7】

セパレータの耐熱性を腐食電流で評価した結果を表わす説明図である。

【図 1 8】

セパレータの耐熱性を接触抵抗で評価した結果を表わす説明図である。

【図 1 9】

セパレータを高温の水蒸気で処理して耐食性を調べた結果を表わす説明図である。

【図 2 0】

セパレータを高温の水蒸気で処理する様子を表わす説明図である。

【図 2 1】

セパレータ 3 0 が燃料電池内で冷却水の流路を形成する様子を表わす説明図である。

【図 2 2】

セパレータ 1 3 0 の構成を表わす説明図である。

【図 2 3】

セパレータ 1 3 0 が備える卑金属コート層 1 6 4 の構成を表わす説明図である。

【図 2 4】

第 3 実施例のセパレータの製造方法を表わす工程図である。

【図 2 5】

穴あけ工程の様子を表わす説明図である。

【図 2 6】

メッキ工程の様子を表わす説明図である。

【図 2 7】

カーボンコート層を形成する工程を表わす説明図である。

【図 2 8】

プレス成形・カット工程を表わす説明図である。

【符号の説明】

1 4 … スタック構造

2 1 … 電解質膜

2 2 … アノード

2 3 … カソード

2 4 P … 燃料ガス流路

2 5 P … 酸化ガス流路

2 6 P …冷却水流路
2 8 …単セル
3 0, 1 3 0 …セパレータ
3 0 a, 3 0 b …セパレータ
3 6, 3 7 …集電板
3 6 A, 3 7 A …出力端子
3 8, 3 9 …絶縁板
4 0, 4 1 …エンドプレート
4 2 …燃料ガス供給孔
4 4 …酸化ガス供給孔
5 0, 5 1 …燃料ガス孔
5 2, 5 3 …酸化ガス孔
5 4, 5 5 …リブ
6 0 …基板部
6 2 …下地コート層
6 4 …貴金属コート層
6 6 …カーボンコート層
7 0, 7 2, 7 4, 7 6, 7 8 …金属薄板
8 0 …穴あけプレス装置
8 1, 8 2 …金型
8 3 …中間ローラ
8 4 …巻き取りローラ
8 5 …メッキ槽
8 6 …槽内ローラ
8 7 …電極
8 8 …乾燥装置
9 0 …塗工装置
9 1 …ドクターブレード
9 2 …黒鉛塗料

9 3 … 塗工ローラ

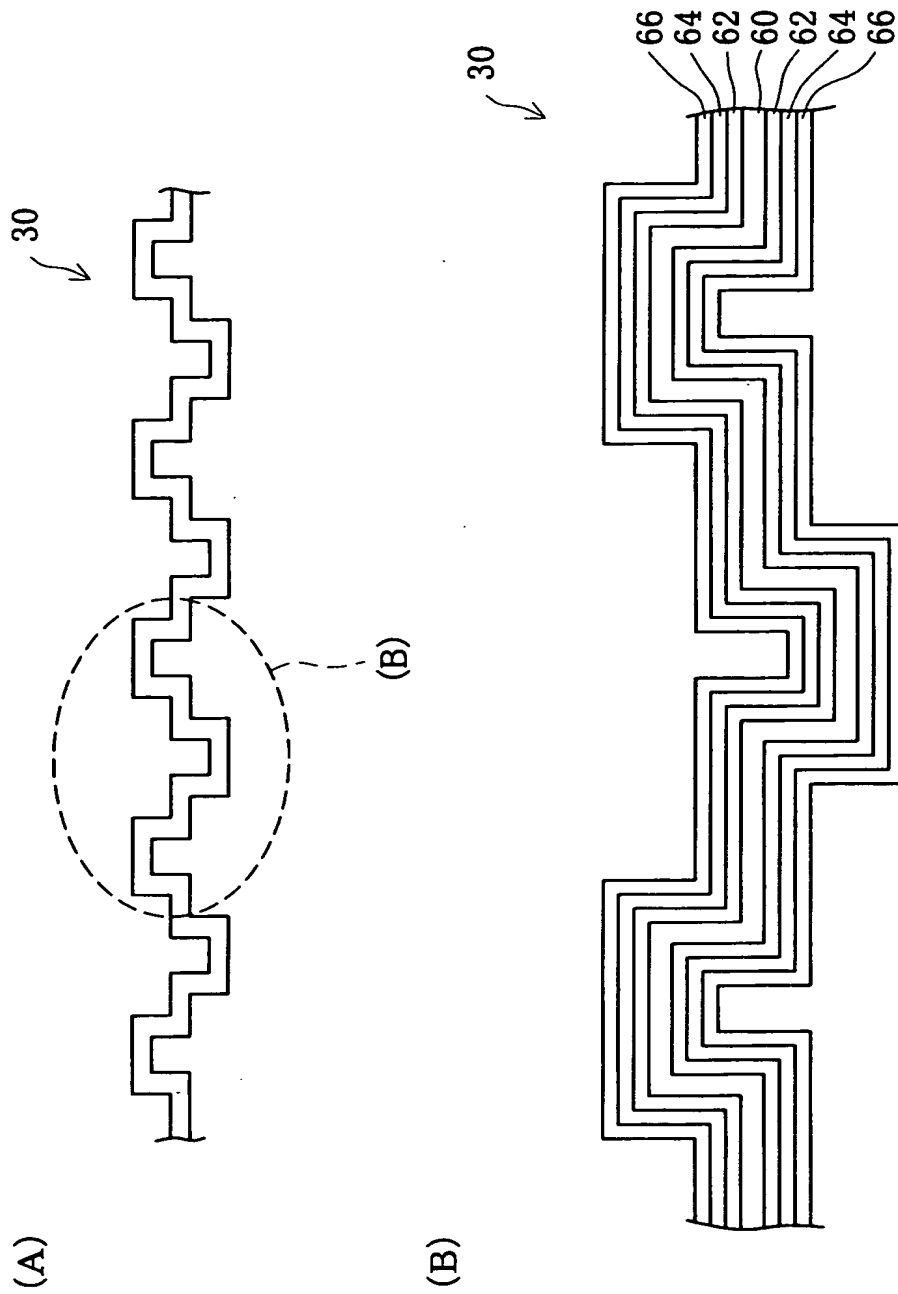
9 5 … プレス・カット装置

9 6, 9 7 … 金型

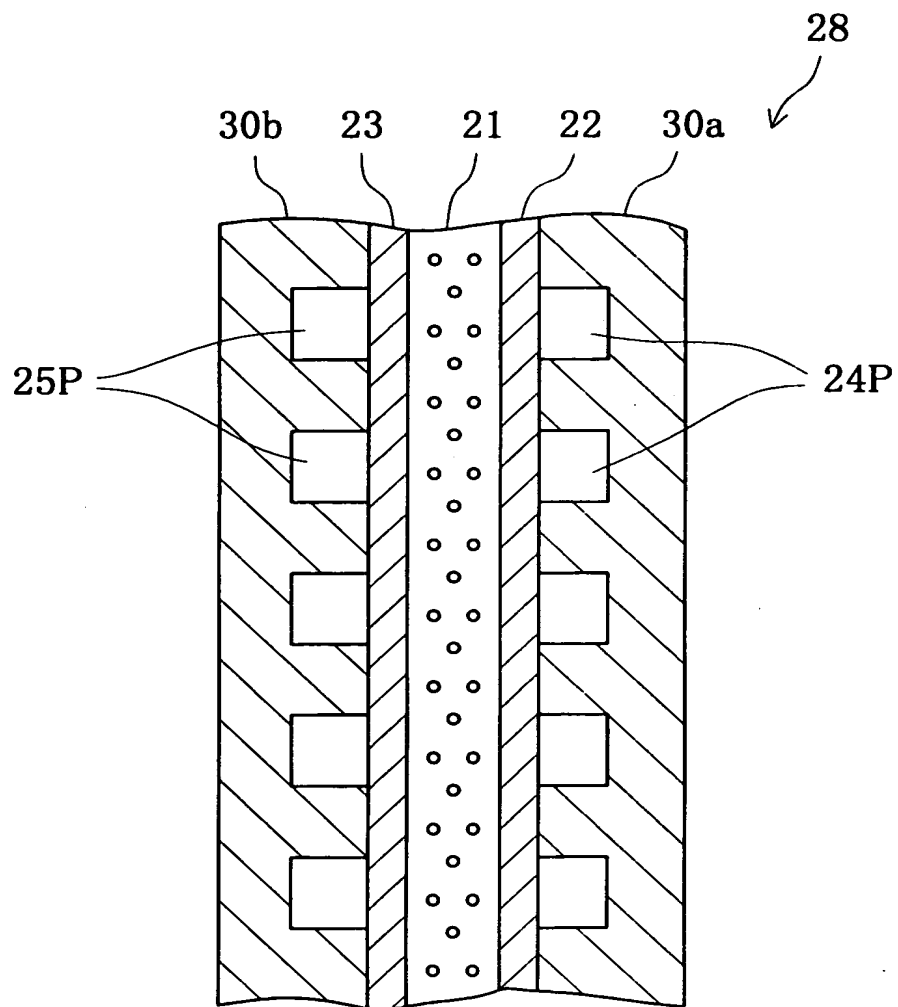
1 6 4 … 卑金属コート層

【書類名】 図面

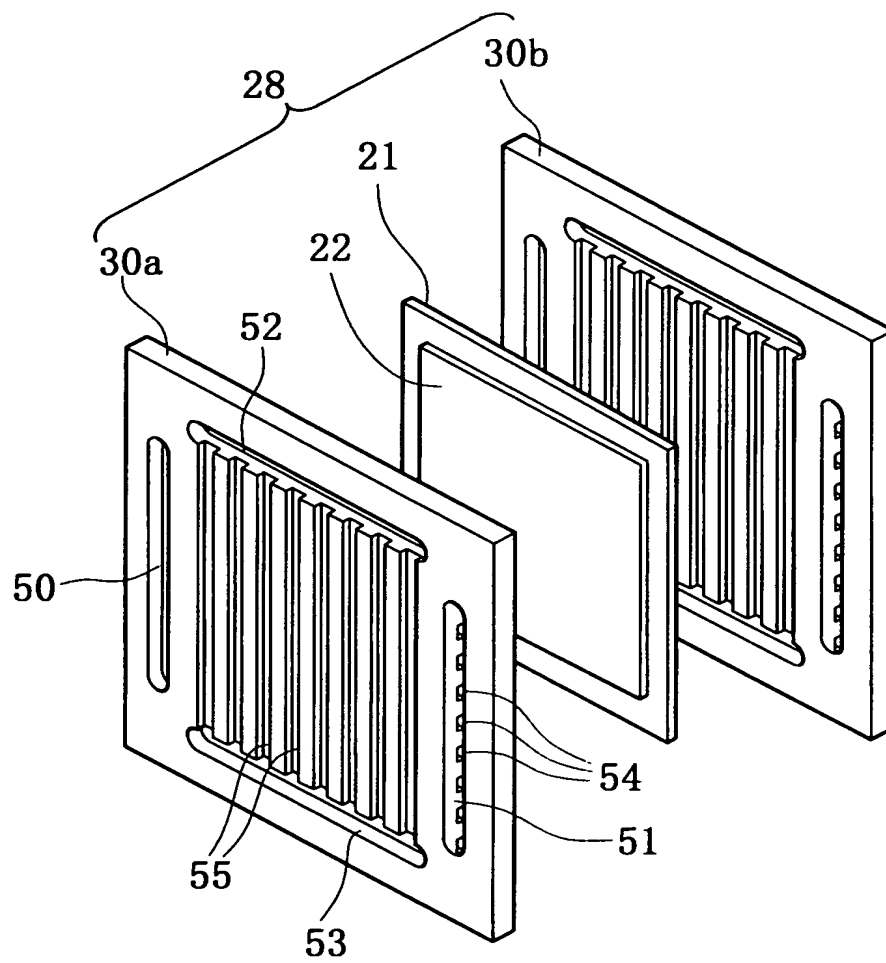
【図 1】



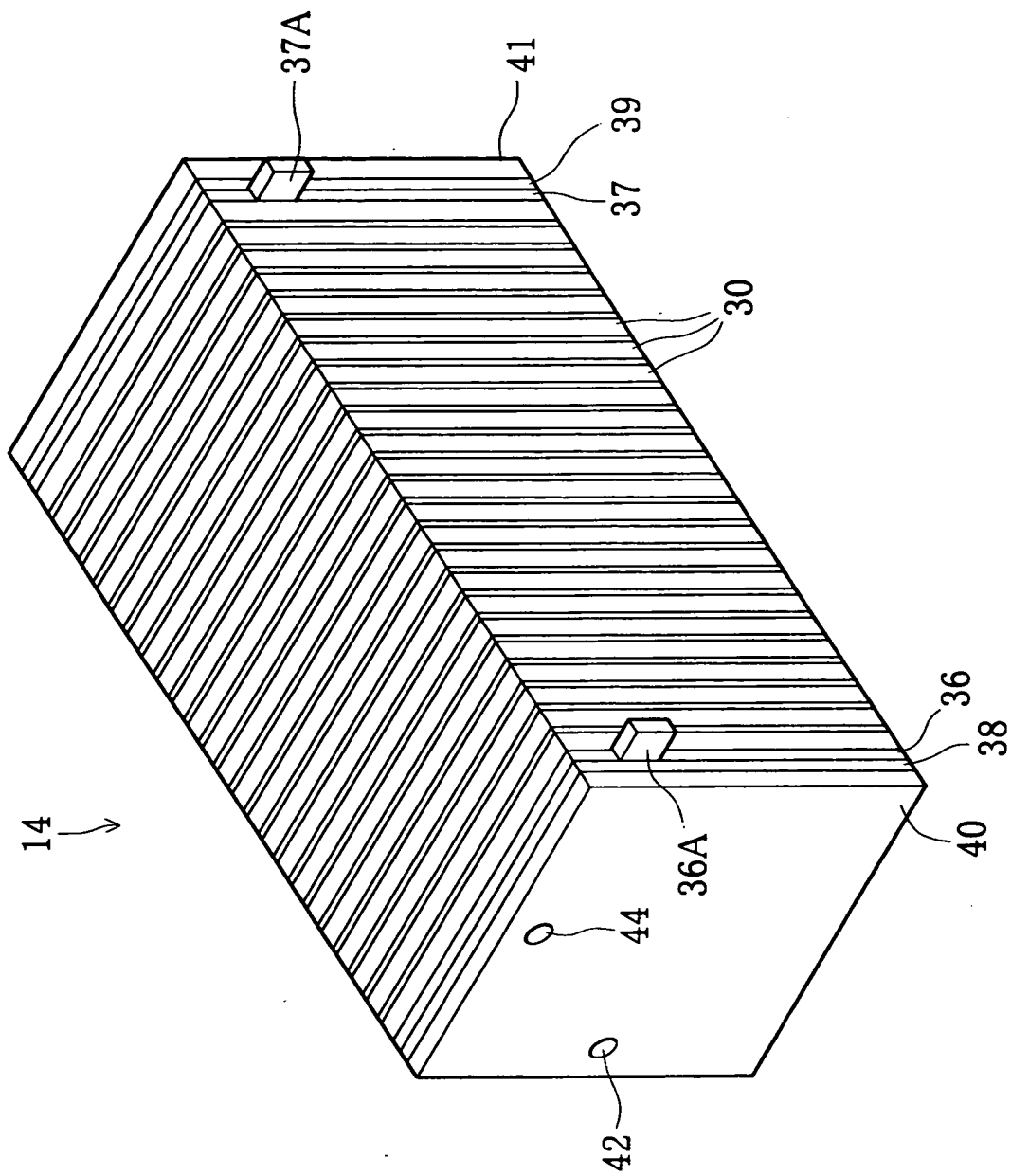
【図 2】



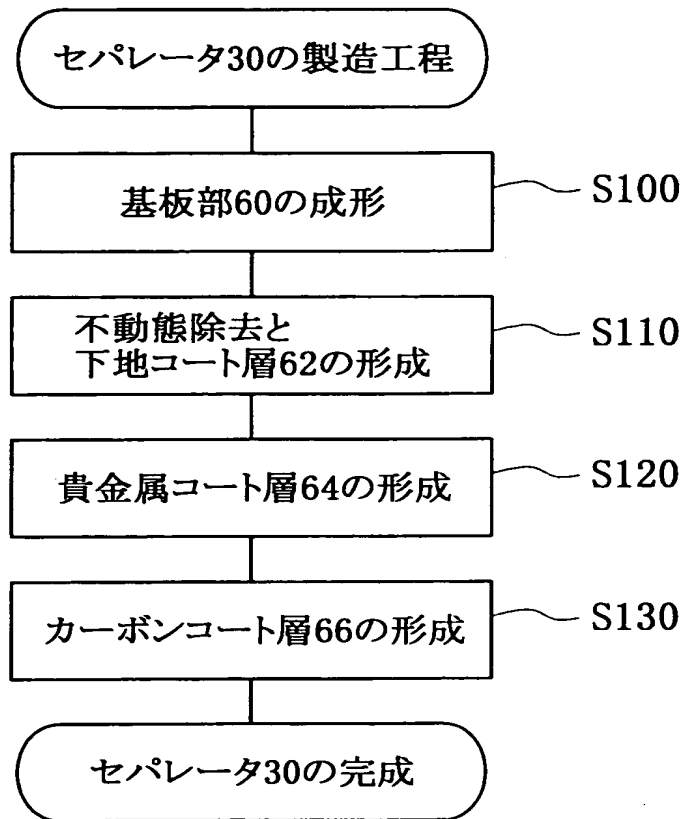
【図 3】



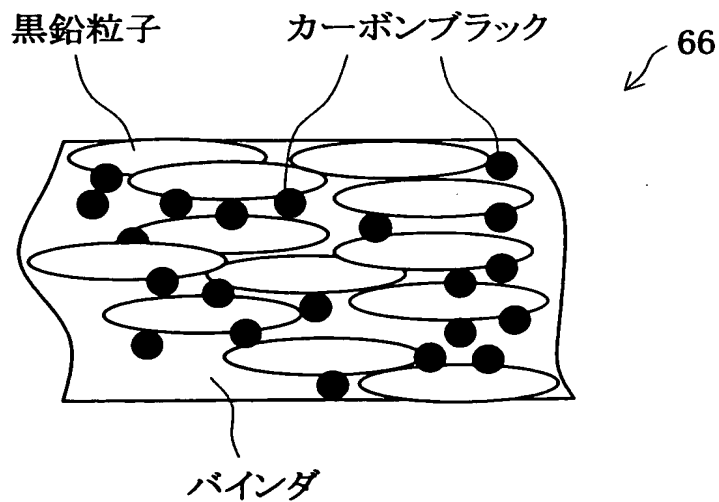
【図4】



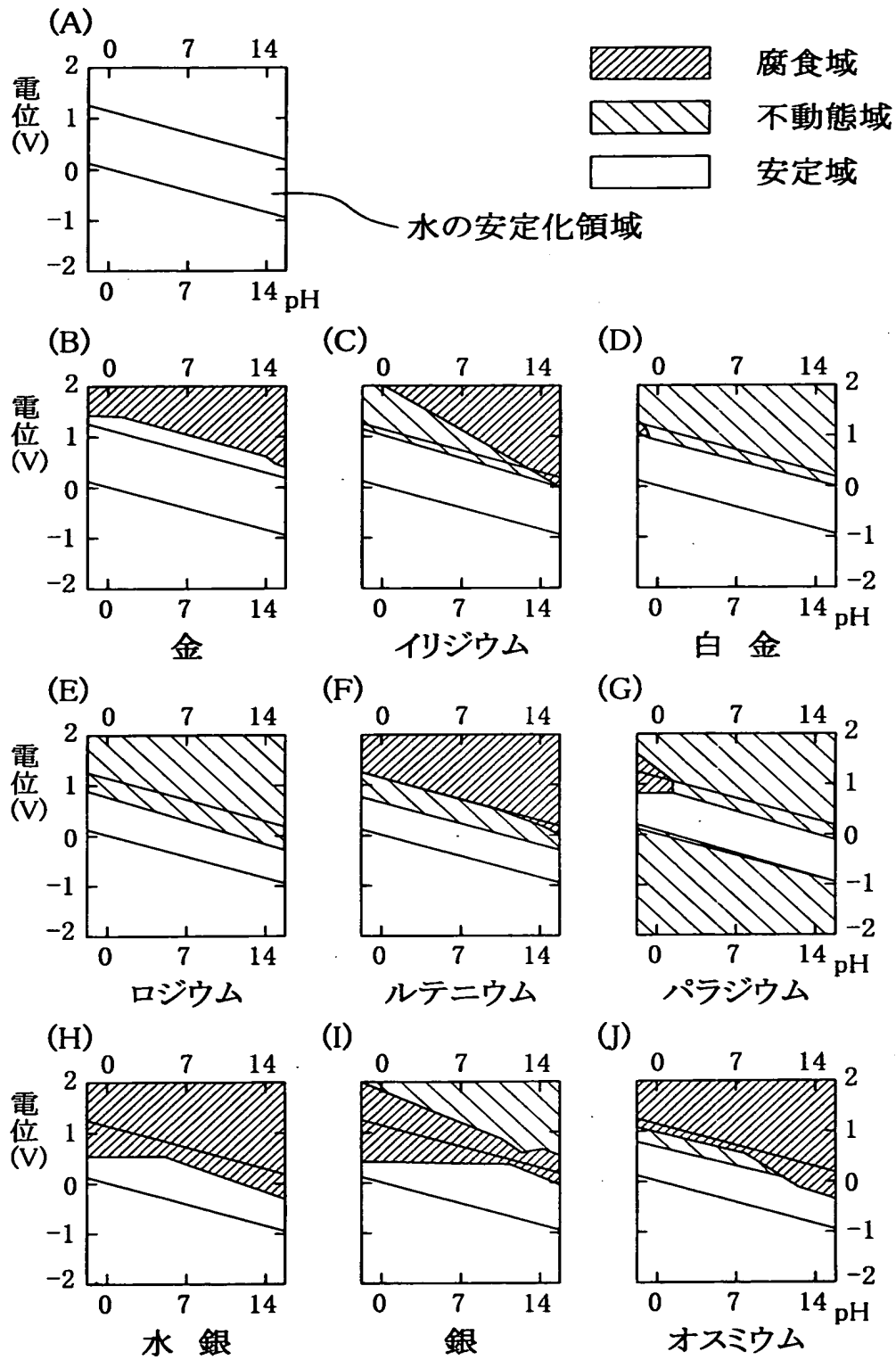
【図 5】



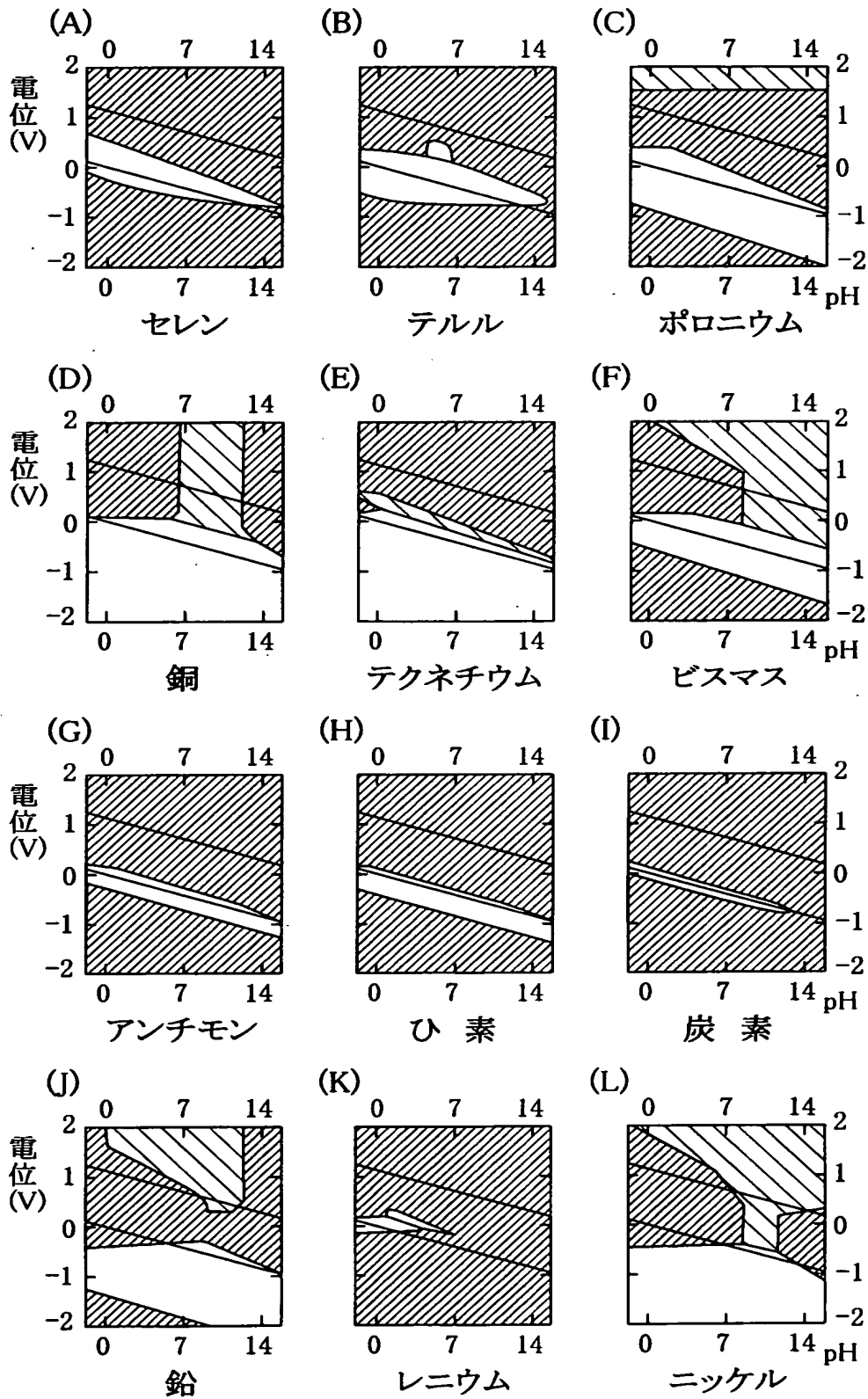
【図 6】



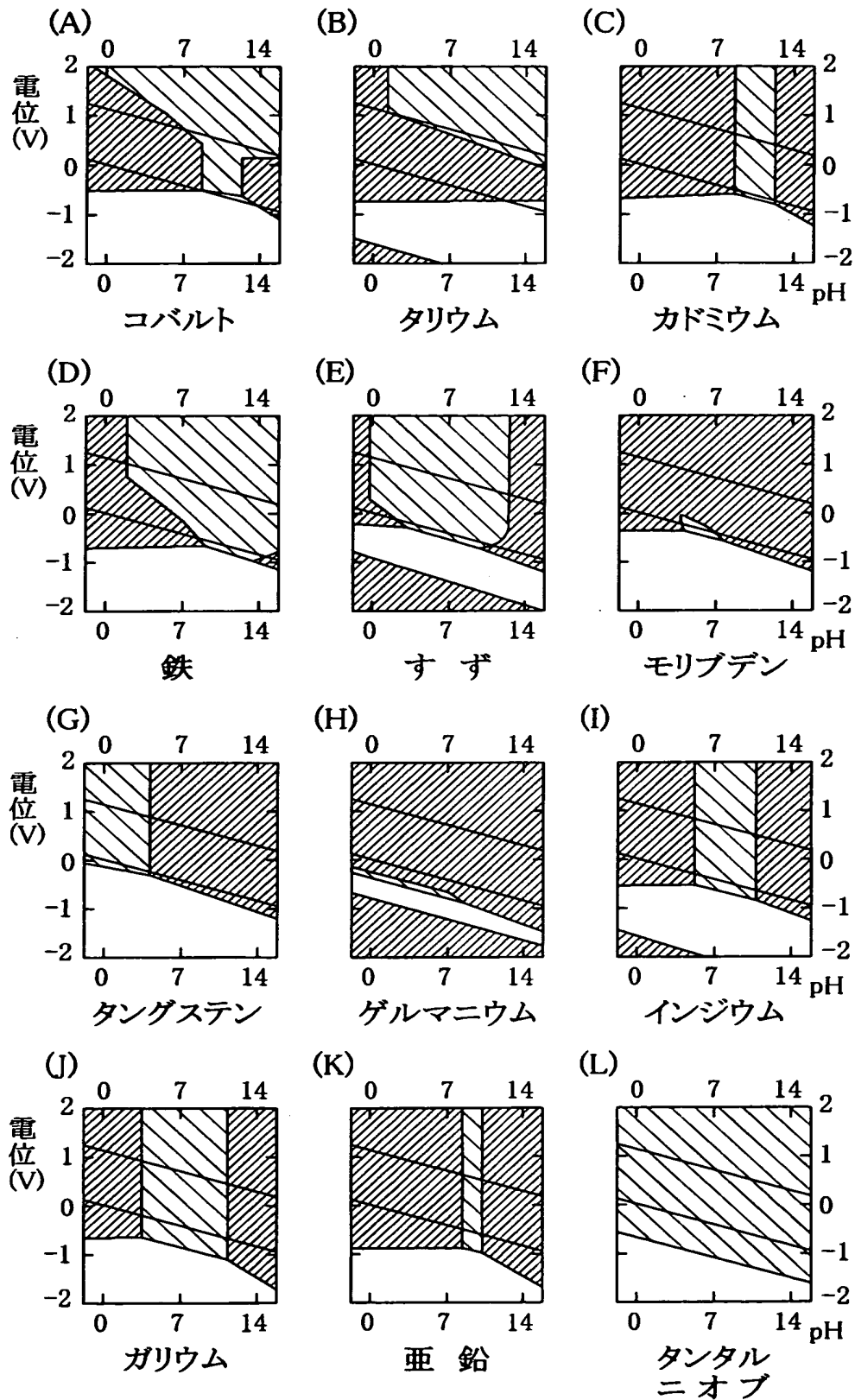
【図 7】



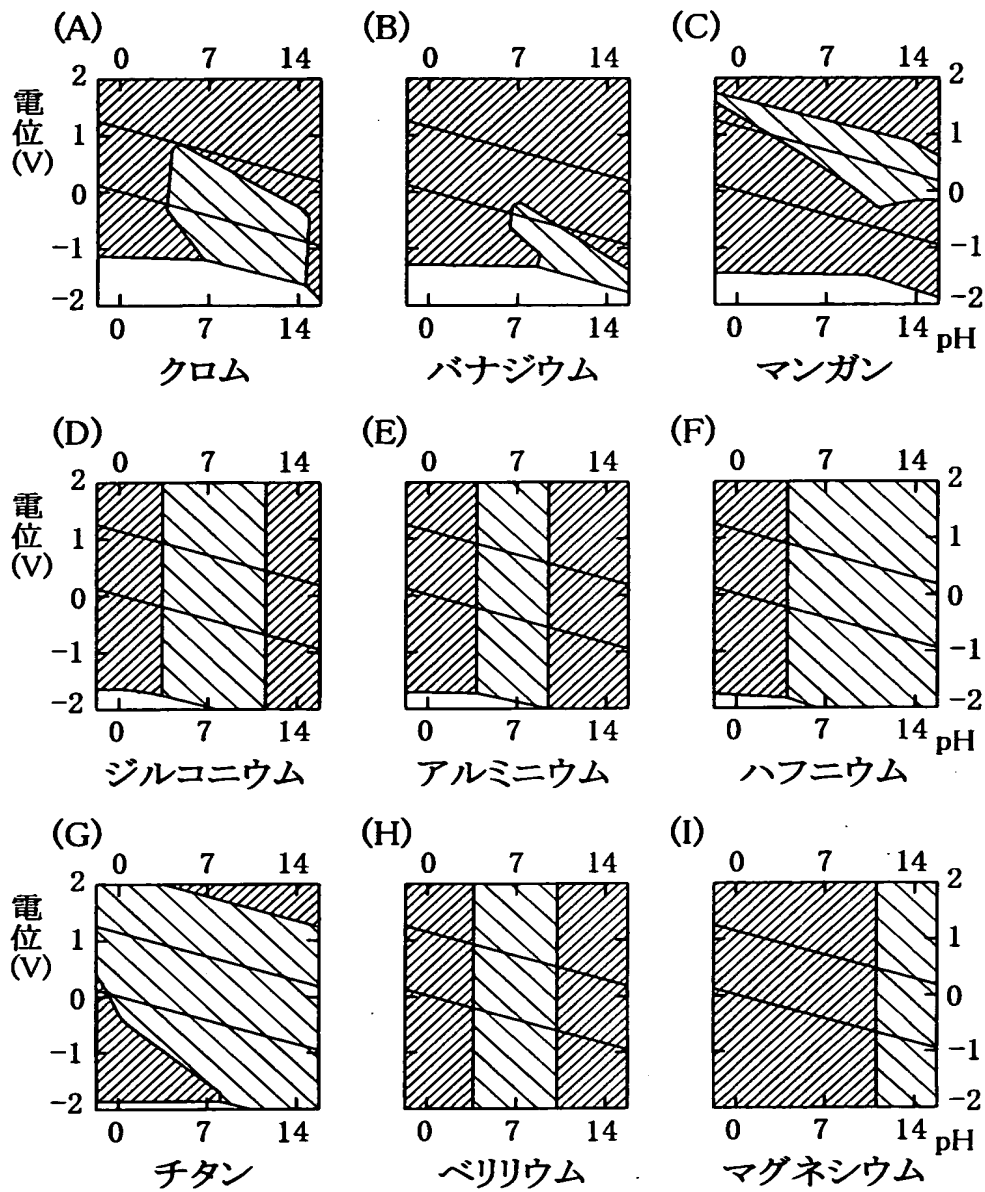
【図 8】



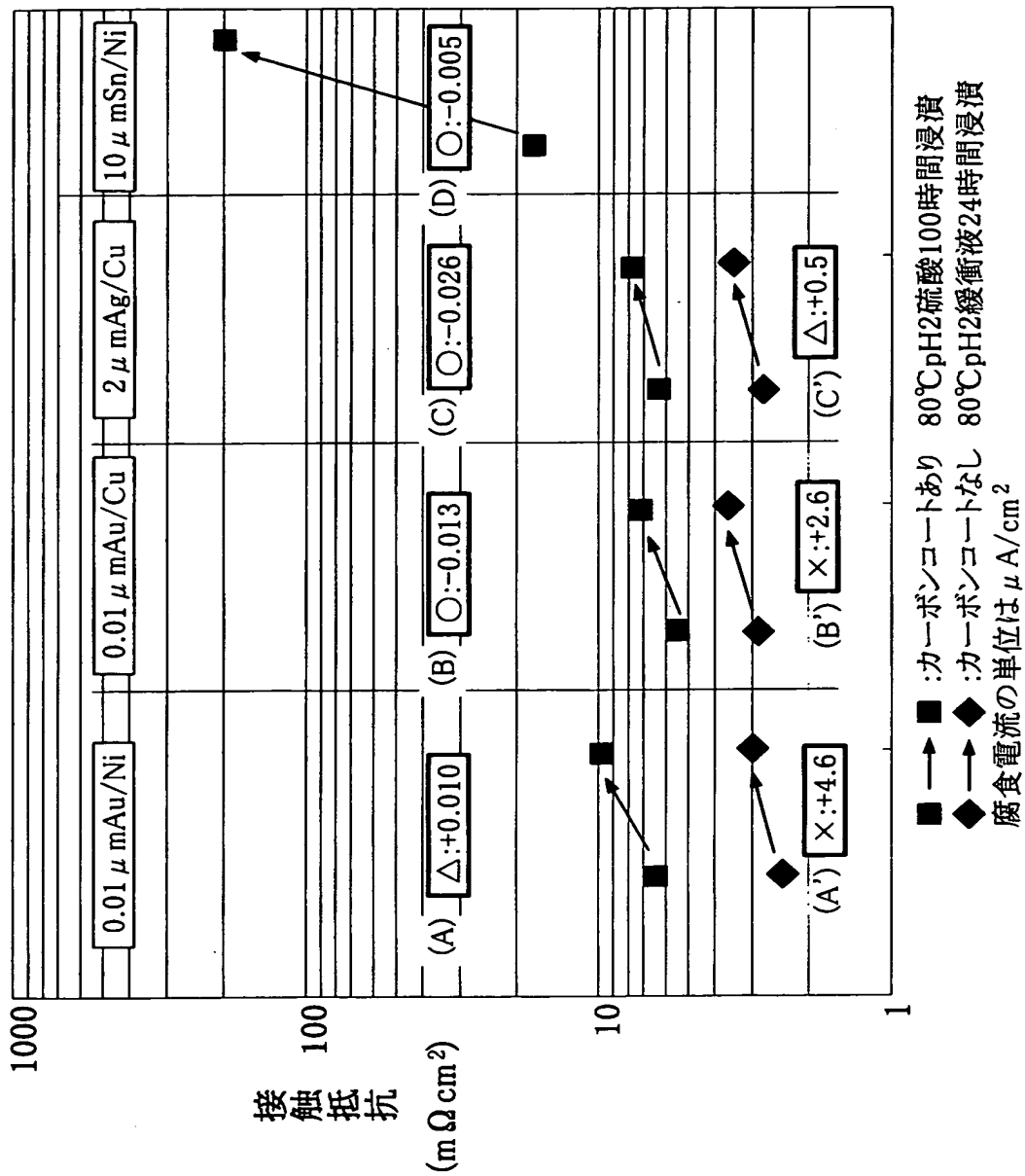
【図9】



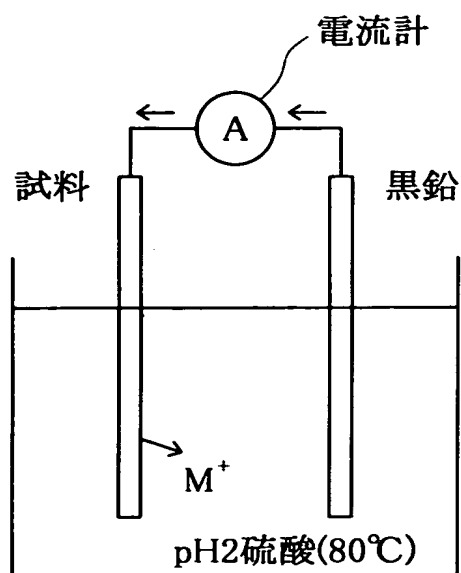
【図10】



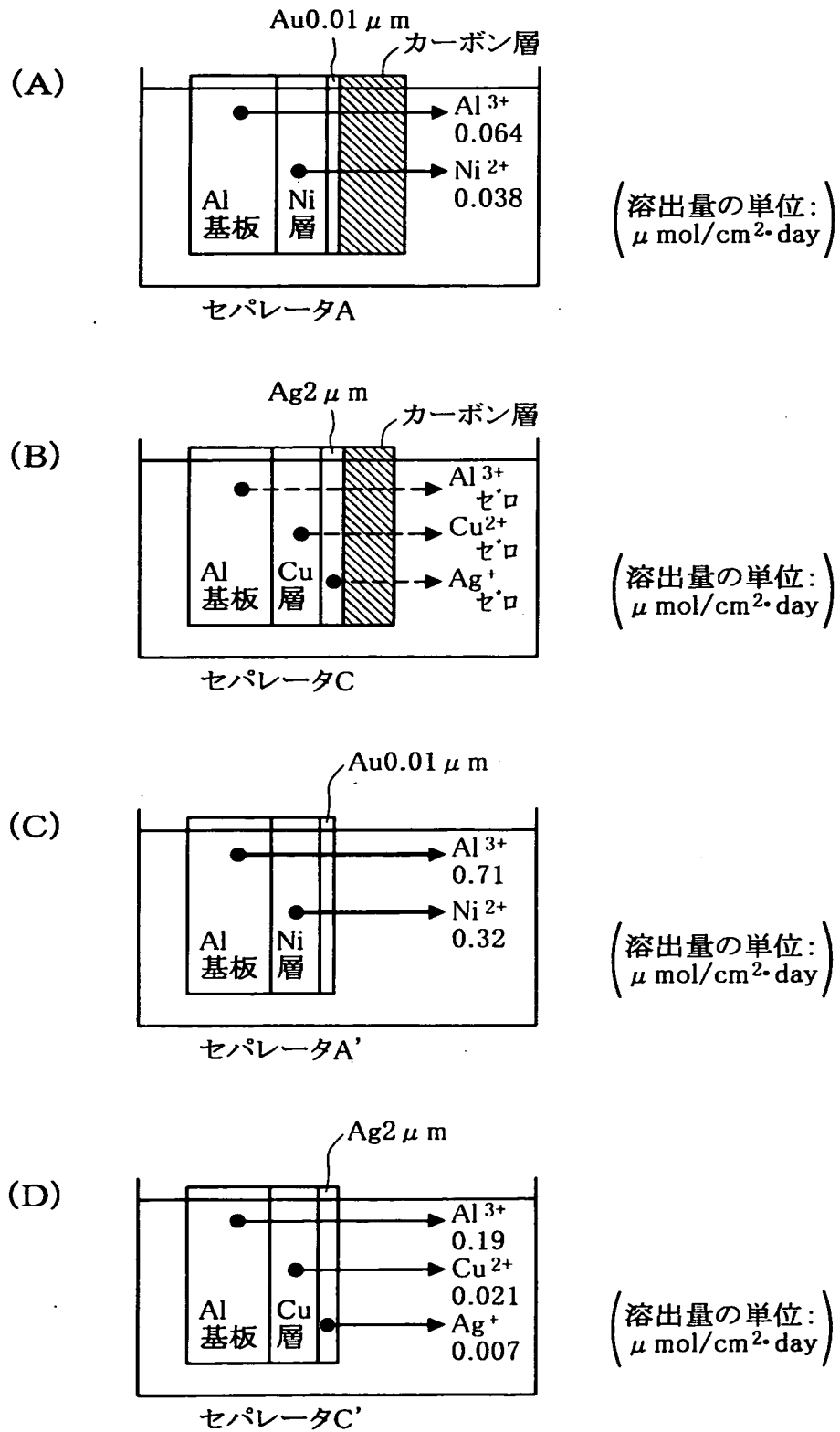
【図 1 1】



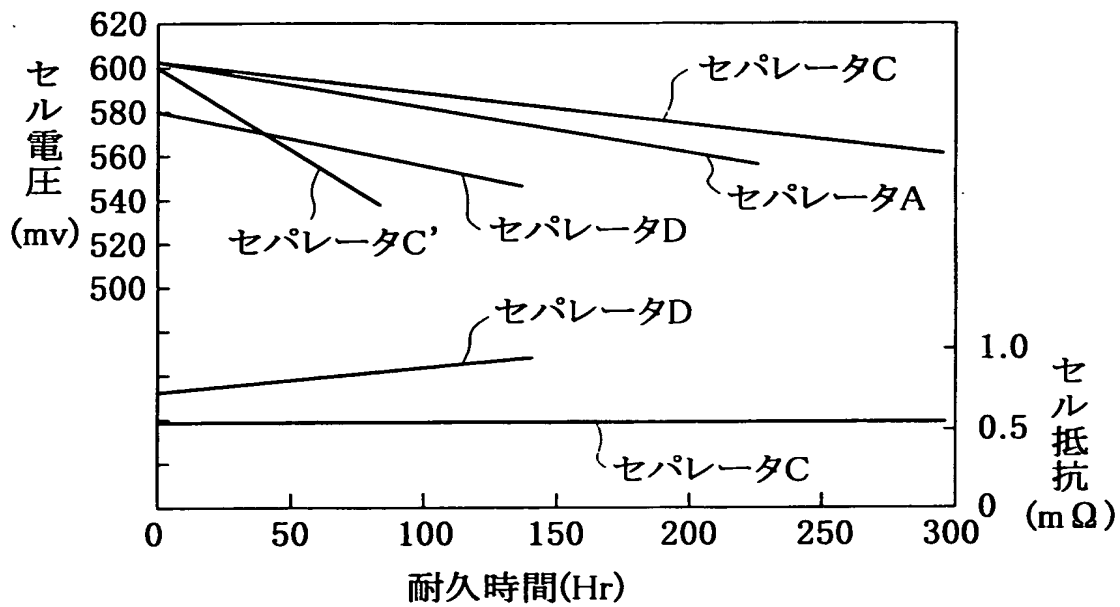
【図 1 2】



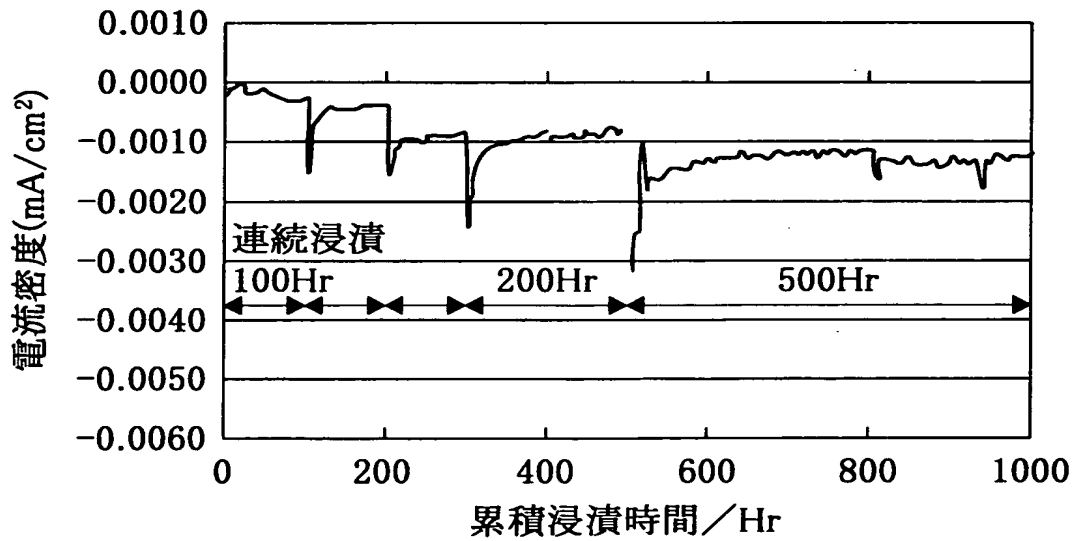
【図 13】



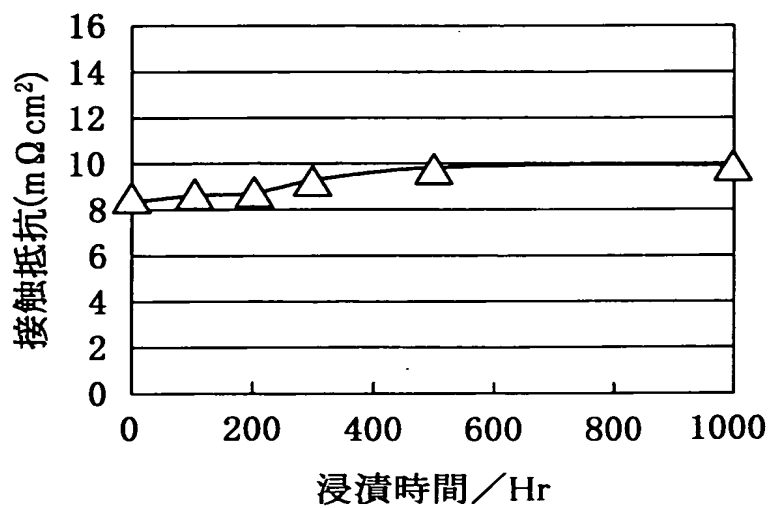
【図 14】



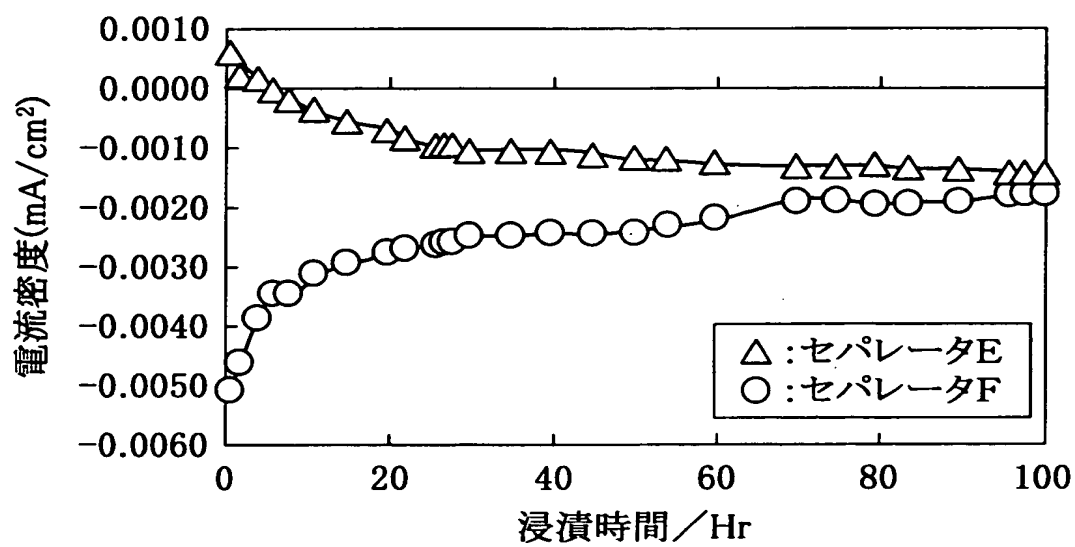
【図 15】



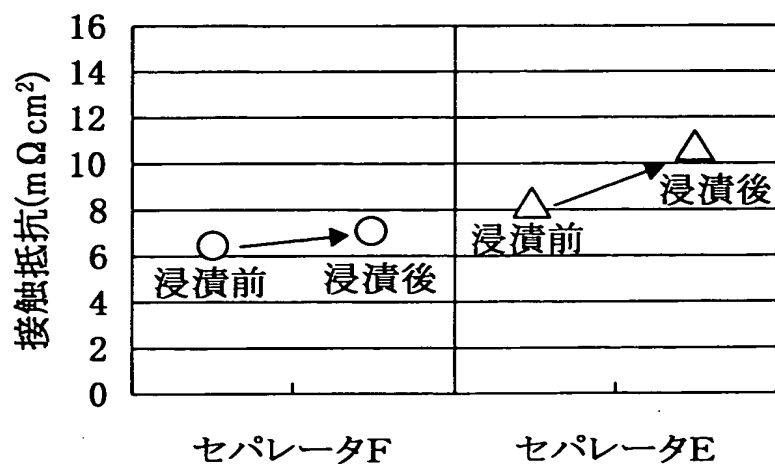
【図 16】



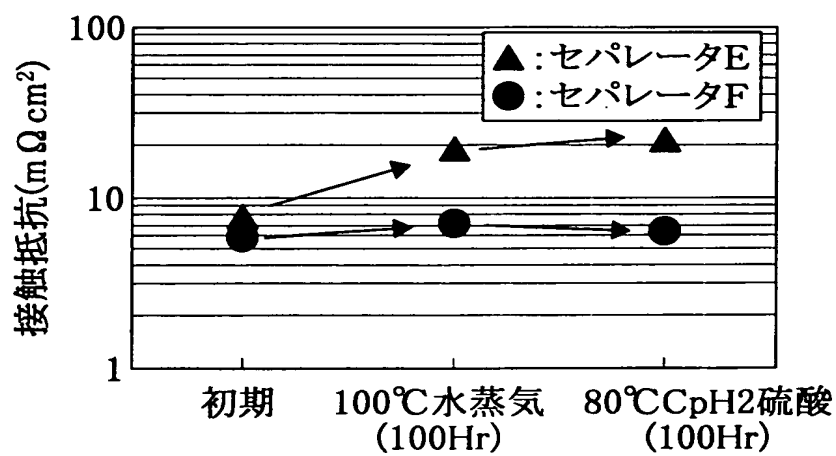
【図 17】



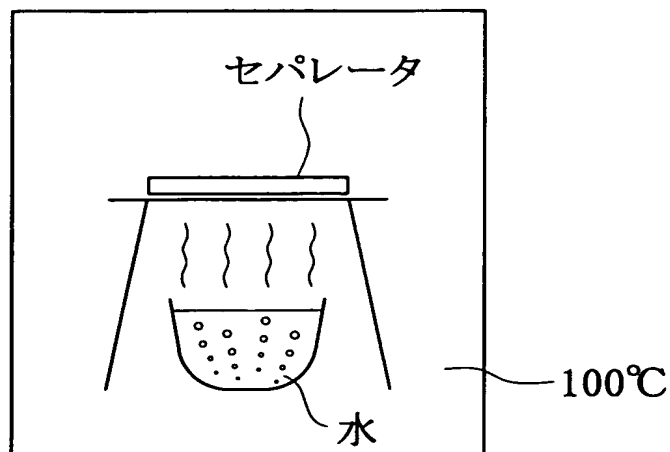
【図 18】



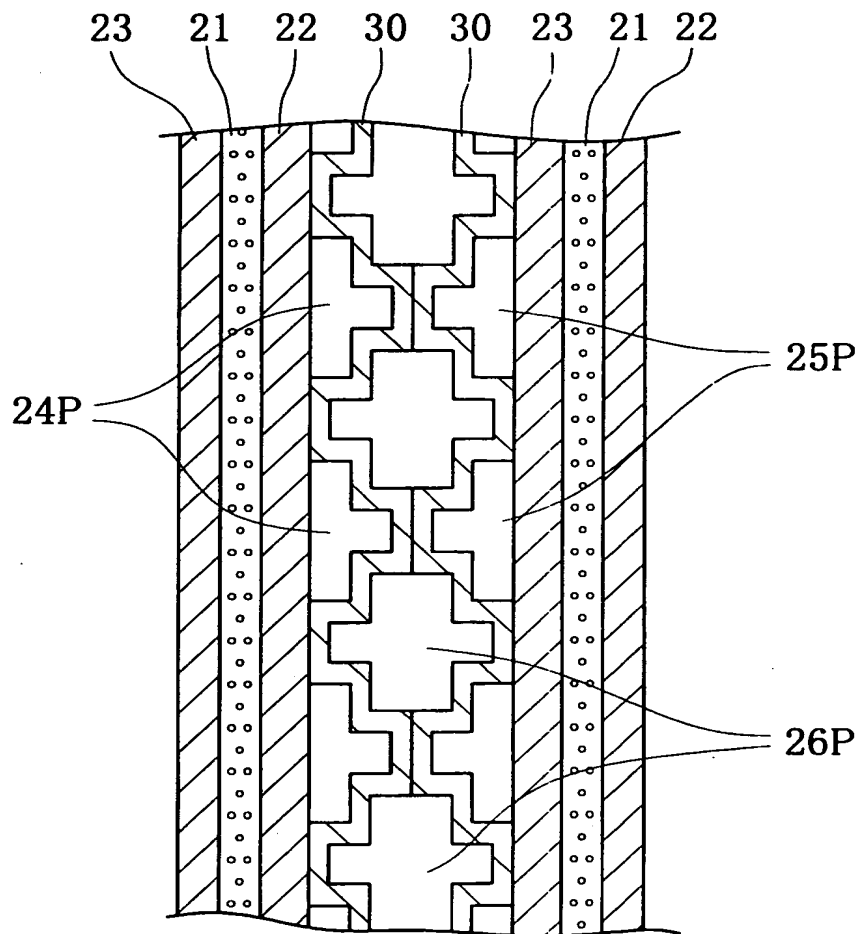
【図 19】



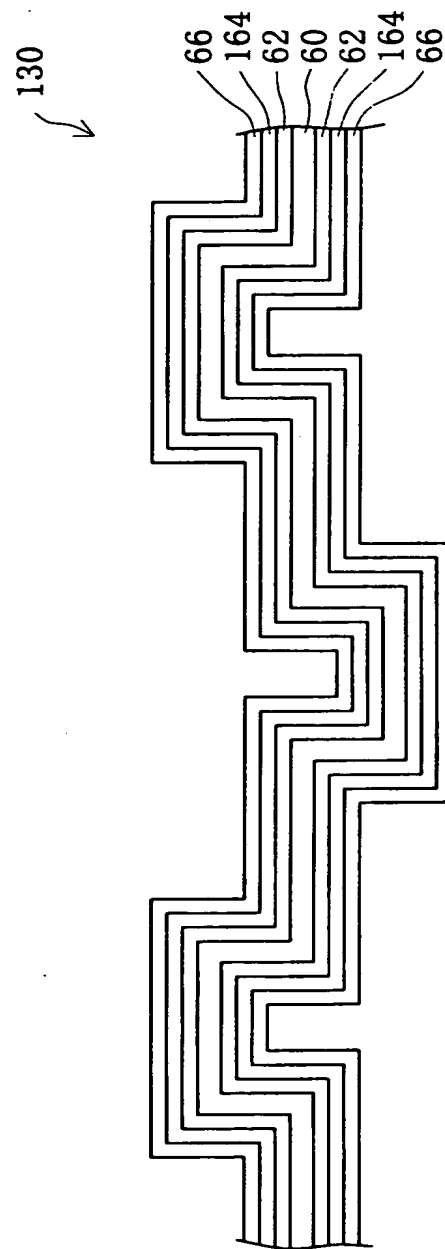
【図 20】



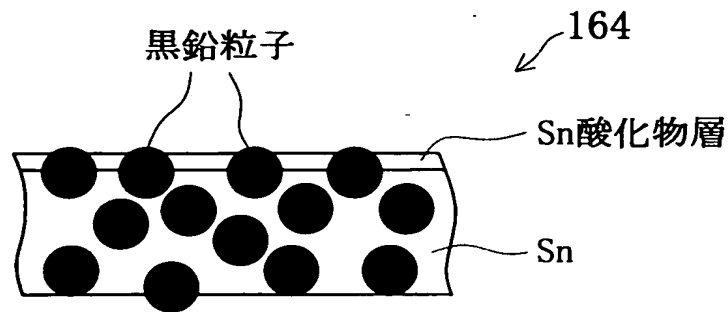
【図 21】



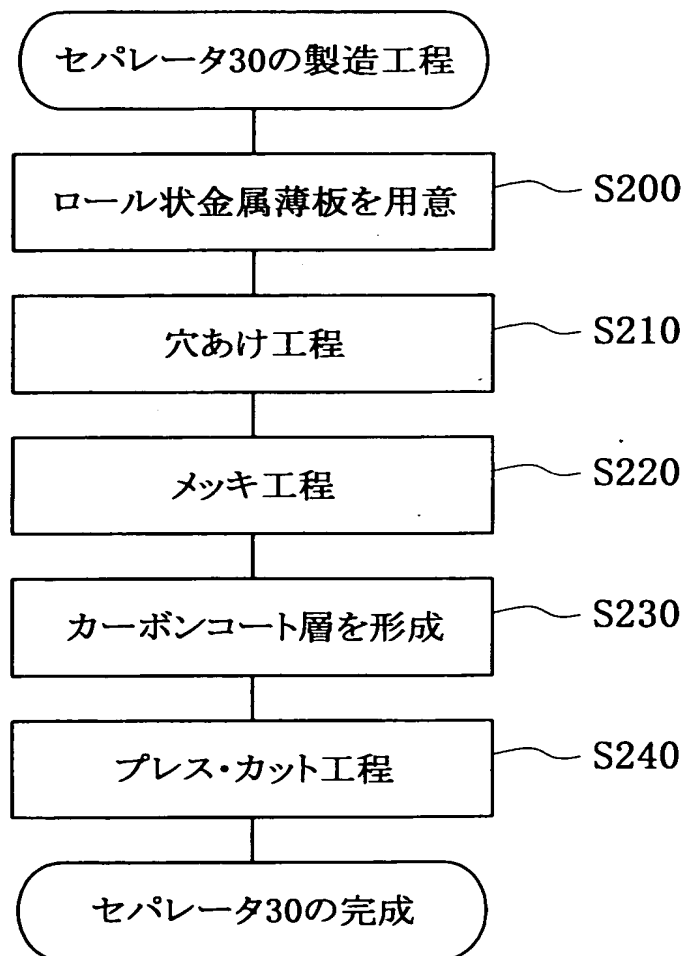
【図 2 2】



【図 2 3】

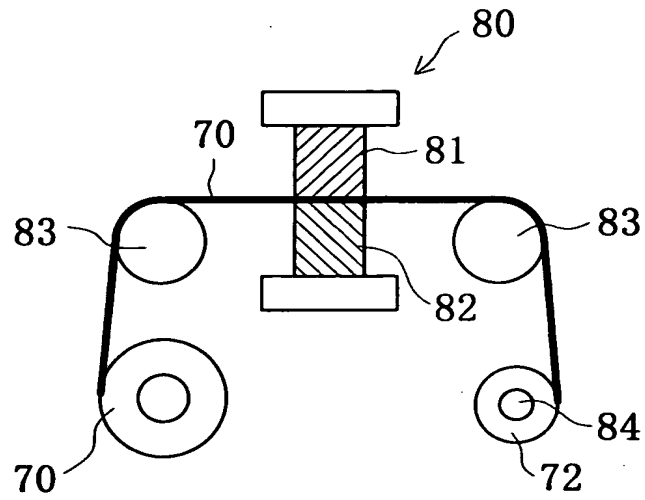


【図 2 4】

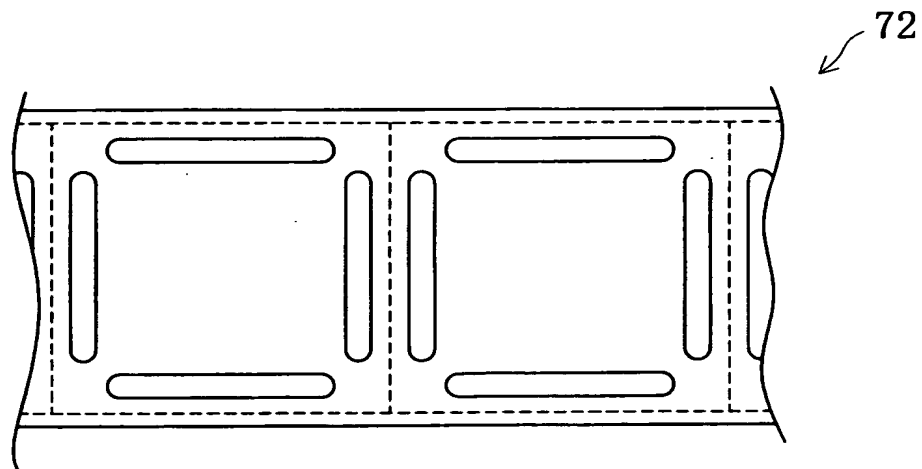


【図 2 5】

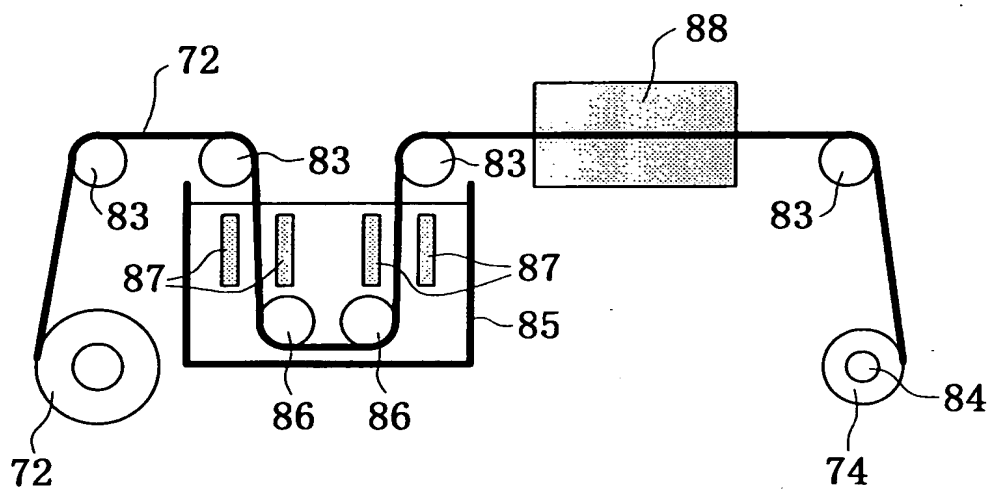
(A)



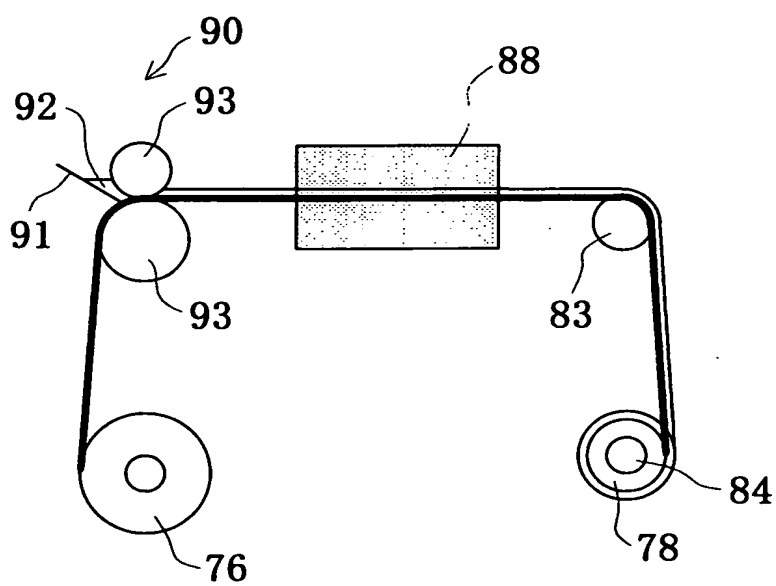
(B)



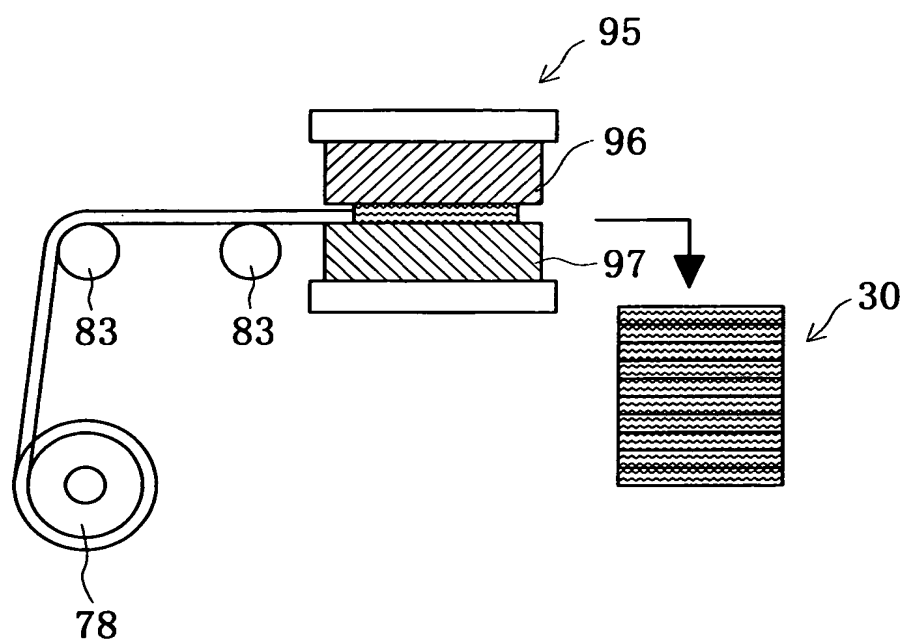
【図 26】



【图 2 7】



【図 2 8】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 金属製ガスセパレータにおいて十分な耐食性を実現する。

【解決手段】 セパレータ 3 0 は、所定の凹凸形状を有する基板部 6 0 と、基板部 6 0 上に設けられた下地コート層 6 2 と、これらを被覆する第 1 コート層 6 4 と、さらにその上に設けられた第 2 コート層 6 6 とを備える。第 2 コート層 6 6 は炭素材料によって構成され、十分な導電性を有すると共に、下側の層を保護する。第 1 コート層 6 4 は貴金属によって形成されるため、第 2 コート層 6 6 に覆われることによって極めて高い耐食性を示す。下地コート層 6 2 および基板部 6 0 は、第 1 コート層 6 4 および第 2 コート層 6 6 に覆われるため腐食の進行を十分に防止することができ、セパレータ 3 0 全体は優れた耐食性を示す。

【選択図】 図 1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000003207]

1. 変更年月日 1990年 8月27日
[変更理由] 新規登録
住 所 愛知県豊田市トヨタ町1番地
氏 名 トヨタ自動車株式会社